

광중합 복합레진의 색안정성 및 투명도 변화에 관한 가속시험

전남대학교 치과대학 보존학교실

황인남 · 오원만

Abstract

AN ACCELERATED TEST FOR COLOR STABILITY AND OPACITY CHANGE OF LIGHT CURING COMPOSITE RESINS

Inn - Nam, Hwang, Won - Mann, Oh

Department of Conservative Dentistry, College of Dentistry, Chonnam National University

Color stability of tooth colored restorative resins is an important factor, particularly in anterior teeth restoration.

The purpose of this study was to evaluate the color stability and opacity change of several light curing composite resins. Specimens of eight composite resins(Prisma AP.H., Brilliant Enamel, Charisma, Durafil, Helio Progress, Herculite XR, P-50 and Silux Plus) were divided into two groups : In Group 1, the specimens were polymerized by visible light curing unit for 60 seconds on both sides and in Group 2, the post-cured specimens were heat tempered by light/heat curing unit for 45 units(about 18 min.). All specimens were stored in distilled water at 60°C for 30 days.

The color characteristics(L*, a*, b*) and opacity of the specimens before and after immersion were measured by spectrophotometry and the total color difference(ΔE^*) and opacity change ($\Delta Y\%$) were computed.

The results obtained were as follows :

1. SP and APH in both groups, DF, HP and HXR in Group 1 showed ΔE^* -value above 2.0.
2. DF, HP, SP and HXR in Group 1 showed higher ΔE^* -value than in Group 2, but the others had no significant difference.
3. The opacity of CH and HXR in Group 1, and of CH and BE in Group 2 decreased after immersion, while that of the others increased.
4. Opacity change of BE, P50 and HXR was significantly different between Group 1 and 2.

These results suggest that color change in the post-cure heat tempered specimens by light/heat curing unit was smaller than that of the specimens polymerized by visible light curing unit. No clinically detectable opacity changes were noted for any materials in either group.

I. 서 론

복합레진에 의한 치아의 수복은 과거 단순한 해부학적, 기능적 치아 수복의 개념에 심미적 수복이라는 새로운 개념을 더하게 되었다. 최근에는 전치부와 같이 비교적 하중이 작은 부위의 심미적 충전에 사용되던 복합레진이 무기 첨가물(inorganic filler)의 개선과 함량의 증가 그리고 새로운 중합 방법들의 개발에 의해 큰 하중이 가해지는 구치부의 충전에도 점차 사용이 증가되는 추세이다. 복합레진들의 물리적 성질이 향상되었다고는 하지만 심미적 요구를 완전히 충족시켜 줄 정도의 색안정성은 아직 갖지 못하고 있는 실정이다¹⁾.

레진의 변색은 내인성 변색과 외인성 변색으로 나눌 수 있다. 내인성 변색은 레진의 기질, 기질과 무기 첨가물의 결합면의 변성과 같은 레진 자체의 변색으로서 amine 경화촉진제²⁻⁴⁾, 중합체 기질(polymer matrix) 또는 미반응 pendant methacrylate 군의 산화⁵⁾가 여기에 속한다. 외인성 변색은 외인성 색소의 흡착 또는 흡수에 의해 발생되는데⁴⁾ 이는 표면의 연마 상태⁶⁾와 연마 방법⁷⁾에 따라 변색의 정도에 차이를 보이며 커피와 차^{4,8,9)}, 유색 음료¹⁰⁾, 청량 음료^{9,11)}, 흡연¹²⁾ 등에 의한 레진의 변색이 보고되었다. 또한 Satou 등¹¹⁾은 재료의 친수성/소수성의 관계도 수분의 흡수와 변색에 관련한다고 보고하였다.

변색을 관찰하는 방법에는 재료의 색상을 표준 색상표와 육안으로 비교하는 방법^{13,14)}과 분광광도계(spectrophotometer)나 색채계측기(colorimeter)를 이용하여 기계적으로 측정하는 방법^{4,6,8,11,15,16)}이 있다. 전자의 방법은 검사자의 주관성이 배제되지 못한다는 단점이 있어 최근 대부분의 연구에서는 후자의 방법을 사용하여 객관성 있는 색변화의 정량적 평가가 이루어지고 있다. Caul과 Schoonover¹⁵⁾는 이러한 방법을 이용하여 직접수복 레진의 색안정성 검사를 미국치과의사협회 규격(ADA specification)의 지정된 방법에 따라 시행했다. Wozniak 등¹¹⁾은 밀도계(densitometer)에 의한 사진의 광학적 밀도 측정 결과가 색채계측기엔 의한 분석 결과와 일치함을 보고했으며, Hayashi 등⁶⁾은 복합레진을 유기 염료에 보관한 실험에서 혼합 48시간 후에 연마한 시편의 색안정성이 혼합 15분 후에 연마한 시편보다

우수했으며 육안적 관찰의 결과가 색채계측기 분석 결과와 일치됨을 보고하였다. Dennison 등¹⁴⁾도 복합레진과 무기 첨가물을 함유하지 않은 레진 그리고 glazes에 대한 색의 측정에서 Munsell 색표계를 이용한 육안적 관찰 결과와 분광색채계를 이용해 측정한 결과 간에 상관 관계가 있음을 보고했다. 또 Cooley 등¹⁷⁾은 불소를 함유한 레진의 불소 방출과 색안정성에 대해 연구하였고, Cooley와 Barkmeier¹⁸⁾는 불화석(stannous fluoride)이 레진의 변색에 미치는 영향에 관해 보고했다. 또한 Asmussen¹⁹⁾은 37°C 물속에 일년간 보관한 경우와 60°C 물속에 한달간 보관하여 가속시험(accelerated test)을 시행한 결과 양자가 좋은 상관 관계를 보였음을 보고하였으며, Peutzfeldt와 Asmussen²⁰⁾은 인레이/온레이 기법에 사용되는 3가지 복합레진의 색안정성을 자외선 조사시와 60°C 물에 30일간 보관한 경우로 나누어 비교 연구하였다.

한편 변색은 재료의 투명도에도 영향을 미치는데 변색이 심한 재료는 투명도의 변화 또한 크다. 투명도는 재료의 깊이에 대한 느낌을 부여하는데 투명성을 잃게되면 재료는 자연스러운 생활력을 상실한 듯이 보인다. 이러한 투명도는 반대의 개념인 contrast ratio 또는 opacity를 측정함으로써 얻을 수 있다. Opacity는 빛이 재료를 투과시 여러 차례의 굴절, 반사와 같은 빛의 산란에 의해 나타난다. 그리고 이것은 기질과 분포상(dispersed phase)의 굴절율, 그리고 분포된 미립자의 수와 크기에 따라 결정된다²¹⁾. Opacity는 시편의 얇은 disc를 각각 백색 배경판과 흑색 배경판에 위치시켰을 때 산란에 의해 반사되는 빛의 강도의 비율로 평가된다^{14,21)}.

이상과 같이 레진의 변색에 대한 많은 연구가 있었으나 가속시험을 이용하여 광중합 복합레진을 인레이/온레이 기법으로 부가 중합한 경우의 변색에 대한 연구는 많지 않았고 복합레진의 opacity량 변화에 대한 연구도 찾아보기 어려웠다.

본 연구에서는 3종의 초미세입자형 복합레진, 3종의 혼합형 복합레진, 그리고 2종의 인레이용 혼합형 복합레진들을 광중합 중합기로 광중합한 군과 광중합 후 인레이/온레이 기법에 이용되는 광/열 중합기로 부가 중합한 군으로 나누어, 광중합 직후와 60°C 증류수에 30일간 보관한 가속시험(accelerated test) 후에 분광색채계측기로 색의 특성 변화를 측

정하고 전체 색변화량을 산출하였으며, 투명도는 반대 개념인 opacity를 산출하여 비교 분석하였다.

II. 실험재료 및 방법

1. 색안정성 측정

1) 시편 제작

본 실험에서는 3종의 초미세입자형(microfilled) 광중합 복합레진(DF, HP, SP)과 3종의 혼합형(hybrid) 광중합 복합레진(APH, HXR, P50), 그리고 2종의 인레이용 혼합형 복합레진(BE, CH)을 사용했다(Table 1). 레진은 크게 두군으로 나누어 각 군에서 한 제품당 10개씩의 시편을 만들었다. 시편은 두께 2mm, 지름 15mm의 구리주형을 이용하여 제작하였다. 시편 제작시 각 제품은 제조 회사의 지시를 따랐으며, 기포 발생을 줄이기 위해 금속 주형에 레진을 주입하고 플라스틱 기구를 사용해 충전하고 양측에 얇고 투명한 셀룰로이드지를 위치시킨 후 양측에 두께 7mm의 투명한 유리판을 대고 C-클램프를 사용해 압축하였다.

중합 정도에 따라 복합레진의 색안정성을 평가하고자 8종의 광중합 복합레진 시편을 가시광선 중합기(Translux EC light curing unit, Kulzer Co., Germany)를 사용해 양면에 각각 60초씩 광중합한 균을 1군으로, 가시광선 중합기로 양면 각각 60초씩 광중합한 시편을 인레이용 광/열 중합기(Unilux AC system light curing unit, Kulzer Co., Germany)로

45 unit(약 18분)동안 부가 중합한 균을 2군으로 분류하였다. 중합이 끝난 시편은 24시간 경과후 Tamiya finishing abrasives # 400, # 800, # 1,000, # 1,200, # 1,500 및 # 2,000(Tamiya Plastic Model Co., Japan)으로 주수하에 양면을 연마하여 두께 2.0 mm의 시편을 제작했다. 완성된 시편은 접착제(cyanoacrylate)를 사용해 치실(floss silk)을 부착하고 각 시편마다 재료명과 시편의 번호를 기입했다.

제작이 끝난 시편들은 분광색채계측기(Color QUEST sphere spectrophotometer, Hunter Associates Laboratory Inc., USA)를 이용해 색의 특성을 측정하고 시편에 부착된 접착제와 치실을 완전히 제거하였다. 가속시험을 위해 Asmussen¹⁹⁾의 연구에 근거하여 광선이 차단된 밀폐되지 않은 항온조에서 시편을 60°C 증류수에 30일간 보관하였다. 증류수는 3일마다 교환하였으며 30일 후 다시 분광색채계측기로 색의 특성을 측정하였다.

2) 색의 측정

중합 직후 증류수에 담그기 전과 증류수에 30일 침적시킨 후에 각 시편의 색의 특성, 삼차극치(tristimulus) X, Y, Z와 CIE L*, a*, b*를 분광색채계측기의 small area reflectance port(0.25inch diameter)를 통해 시편의 배면에 백색 표준물(white standard)을 접촉시킨 상태에서 측정했다. CIE 1976 L*a*b* scale은 Adams-Nickersman space의 단순화된 계급근의 변형으로 삼차원의 색공간에 색을 나타낼 수 있는 좌표이다. 즉 L*은 밝기(lightness)를 나타내며

Table 1. Light curing composite resins used in the investigation

Brand Name	Code	Shade&Batch No.	Filler Vol.(%)*	Manufacturer
Durafil	DF	A20, 30-06-93 034	50	Kulzer Co. Ltd., Germany
Helio Progress	HP	LY, 460109	64	Vivadent Inc., USA
Silux Plus	SP	L, 5702L	30	3M Co., USA
Herculite XR	HXR	U, 3604-20182	59	Kerr Mfg. Co., USA
Prisma AP. H	APH	U, 647115	57	Caulk/Dentsply, USA
P-50	P50	XL, 9350XL	77	3M Co., USA
Brilliant Enamel	BE	A20, 9208959	78	Coltene/Whaledent, Switzerland
Charisma	CH	A20, 95-06-30 039	60	Kulzer Co. Ltd., Germany

* Filler Vol.(%) were quoted from Farah and Powers²²⁾.

0은 검정색을 나타낸다. a^* 는 (+)이면 redness, (0)은 gray, 그리고 (-)이면 greenness를 나타낸다. b^* 는 (+)이면 yellowness, (0)은 gray, 그리고 (-)이면 blueness를 나타낸다²³⁾. 색의 특성 변화(ΔL^* , Δa^* , Δb^*)와 전체 색변화량(ΔE^*)은 분광색채측정기에 연결된 computer system(IBM ps/2 Model 80286, IBM Computer Inc., USA)에 의해서 산출된다.

분광색채측정기의 사양은 Reflectance Specular Include Mode, CIE $L^*a^*b^*$ scale, 10° observer, 그리고 표준광원 D65를 사용했다. 어떤 광원에 대한 CIE $L^*a^*b^*$ scale과 CIE X, Y, Z scale간의 관계는 다음과 같다²³⁾.

$X/X_n, Y/Y_n, Z/Z_n > 0.008856$ 이면

$$L^* = 116(Y/Y_n)^{1/3} - 16$$

$$a^* = 500[(X/X_n)^{1/3} - (Y/Y_n)^{1/3}]$$

$$b^* = 200[(Y/Y_n)^{1/3} - (Z/Z_n)^{1/3}]$$

$X/X_n, Y/Y_n, Z/Z_n \leq 0.008856$ 이면

$$L^* = 903.3(Y/Y_n)$$

$$a^* = 500[f(X/X_n) - f(Y/Y_n)]$$

$$b^* = 200[f(Y/Y_n) - f(Z/Z_n)]$$

여기서

$$f(X/X_n) = 7.787(X/X_n) + 16/116$$

$$f(Y/Y_n) = 7.787(Y/Y_n) + 16/116$$

$$f(Z/Z_n) = 7.787(Z/Z_n) + 16/116$$

여기서 X, Y, Z는 CIE 삼자극치이며, X_n, Y_n, Z_n 은 특정 광원의 삼자극치이다.

전체적인 색변화 ΔE^* 는 다음의 식으로 구할 수 있다.

$$\Delta E^* = [(\Delta L^*)^2 + (\Delta a^*)^2 + (\Delta b^*)^2]^{1/2}$$

2. Opacity의 측정

색안정성 측정에 사용한 복합레진과 동일한 레진으로 두께 1.0mm, 지름 15mm의 구리 주형을 이용해 시편을 제작했다. 시편의 제작 및 각 군별 중합 방법도 색안정성 실험에서와 동일하게 시행했다. 완성된 시편은 분광색채측정기를 이용해 각 시편의 삼자극치 X, Y, Z값을 측정하고 연결된 computer system(IBM ps/2)에서 opacity(Y%)를 환산했다. 그리고 증류수에 담겨 색안정성 실험에 사용했던 것과

동일한 60°C 항온조에서 30일간 보관했다. 증류수는 3일마다 교환하였으며, 보관이 끝난 시편들은 분광색채측정기로 다시 opacity를 측정했다.

Opacity의 측정은 contrast ratio의 측정에 의하여 결정된다. 분광색채측정기의 small area reflectance port를 통해 배면에 흑색 표준물(black standard)을 접촉시킨 시편의 Y값을 배면에 백색 표준물(white standard)을 접촉시킨 동일한 시편의 Y값으로 나누어 Y% 또는 opacity를 얻는다.

$$\text{Opacity}(Y\%) = \frac{Y \text{ Black backing}}{Y \text{ White backing}}$$

3. 통계학적 분석 방법

각 제품간의 전체 색변화량과 opacity 변화량을 비교하기 위해 one-way ANOVA를 시행했으며, 중합 방법에 따른 각 군간의 전체 색변화량과 opacity 변화량을 비교하기 위해 nonpaired t-test를 시행했다.

III. 실험 성적

1. 색안정성 측정 결과

광중합 복합레진 1군과 2군의 색변화 특성(ΔL^* , Δa^* , Δb^* , 그리고 ΔE^*)은 Table 2와 3에 기록된 바와 같다. ΔL^* 값은 DF, HP, SP는 1, 2군 모두에서, BE, CH는 1군에서 그리고 P50은 2군에서 감소를 보였으며 나머지 제품들에서는 증가를 보였다. SP는 양군 모두에서 가장 큰 L^* 의 변화량을 보였고, 1군의 CH와 2군의 HXR이 가장 작은 변화량을 나타냈다. Δa^* 값은 1군의 APH, CH, HXR과 P50 그리고 2군의 HXR이 가장 작은 변화량을 나타냈다. Δa^* 값은 1군의 APH, CH, HXR과 P50 그리고 2군의 APH와 BE에서 감소를 보였으며 나머지 제품들에서는 증가를 보였다. SP는 1, 2군 모두에서 가장 큰 변화량을 보였으며, 1군의 CH와 2군의 HXR에서 가장 작은 변화량을 보였다. Δb^* 는 초미세입자형 복합레진들(F, HP, SP)은 1, 2군 모두에서 BE는 1군에서 그리고 P50은 2군에서 감소를 보인 반면 나머지 제품에서는 증가를 보였다. 색변화의 색채 특성은 Fig. 1의 a^* , b^* 도면에 나타나 있다.

APH, CH 그리고 BE는 2군에서 1군보다 큰 ΔE^* 값을 보였으나 통계학적으로 유의한 차이는 보이지 않았으며($P > 0.05$), P50은 1군에서 2군보다 큰

ΔE^* 값을 보였으나 유의한 차이는 없었다. 그러나 DF, HP, HXR과 HP는 2군에 비해 1군에서 더 큰 ΔE^* 값을 보였다($P < 0.05$). 가장 큰 전체 색변화량은 1, 2군의 SP에서 관찰되었으며 2군의 HXR과 P50은 1.0이하의 ΔE^* 값을 나타냈다(Fig. 2).

2. Opacity 변화

광중합 복합레진 1군과 2군의 초기 opacity의 값, 60°C 증류수에 30일간 보관한 후의 opacity의 값, 그리고 opacity의 변화량은 Table 4와 5에 기록된 바와 같다.

60°C 증류수에 30일간 보관 후 opacity의 감소는 1군의 CH와 HXR 그리고 2군의 BE와 CH에서 관찰되었으며, 나머지 제품들은 증가를 보였다. BE, HXR 그리고 P50은 1군과 2군의 opacity 변화량이 통계학적으로 유의한 차이를 보였으나($P < 0.05$) 나머지 제품들은 유의한 차이가 없었다($P > 0.05$). APH와 SP는 1, 2군 모두에서 큰 opacity의 증가를 보인 반면 CH는 1, 2군 모두에서 opacity의 감소를 보였다(Fig. 3).

Table 2. Result of color change of group 1 after immersion for 30 days expressed as means

	ΔL^*	Δa^*	Δb^*	ΔE^*
DF	-0.947(0.598)	1.584(1.179)	-0.961(0.933)	2.306(1.233)
HP	-1.173(0.188)	2.658(0.491)	-1.393(0.337)	3.223(0.616)
SP	-3.017(0.420)	7.785(1.031)	-2.112(0.708)	8.624(1.231)
HXR	1.133(0.129)	-2.096(0.802)	2.265(0.319)	3.329(0.677)
APH	1.358(0.136)	-1.421(0.277)	2.452(0.211)	3.148(0.322)
P50	0.053(0.633)	-0.418(1.479)	0.543(0.806)	1.383(0.280)
BE	-0.637(0.151)	0.861(0.433)	-0.109(0.389)	1.196(0.244)
CH	-0.052(0.895)	-0.235(0.689)	0.619(1.532)	1.579(1.159)

Standard deviations are in parentheses.

ΔL^* , Δa^* , Δb^* : color difference.

ΔE^* : total color difference.

Table 3. Result of color change of group 2 after immersion for 30 days expressed as means

	ΔL^*	Δa^*	Δb^*	ΔE^*
DF	-0.525(0.438)	0.572(0.275)	-0.775(0.760)	1.211(0.744)
HP	-0.532(0.094)	1.493(0.214)	-0.867(0.166)	1.809(0.267)
SP	-2.004(1.283)	4.413(2.742)	-0.428(1.801)	5.133(3.072)
HXR	0.110(0.409)	0.064(0.212)	0.662(0.493)	0.809(0.481)
APH	1.779(0.555)	-2.104(0.679)	1.947(1.296)	3.498(1.224)
P50	-0.283(0.527)	0.141(0.631)	-0.310(0.598)	0.665(0.872)
BE	0.573(0.559)	-0.148(0.238)	1.054(0.963)	1.222(1.122)
CH	0.547(0.414)	0.746(1.022)	1.052(0.705)	1.713(0.796)

Standard deviations are in parentheses.

ΔL^* , Δa^* , Δb^* : color difference.

ΔE^* : total color difference.

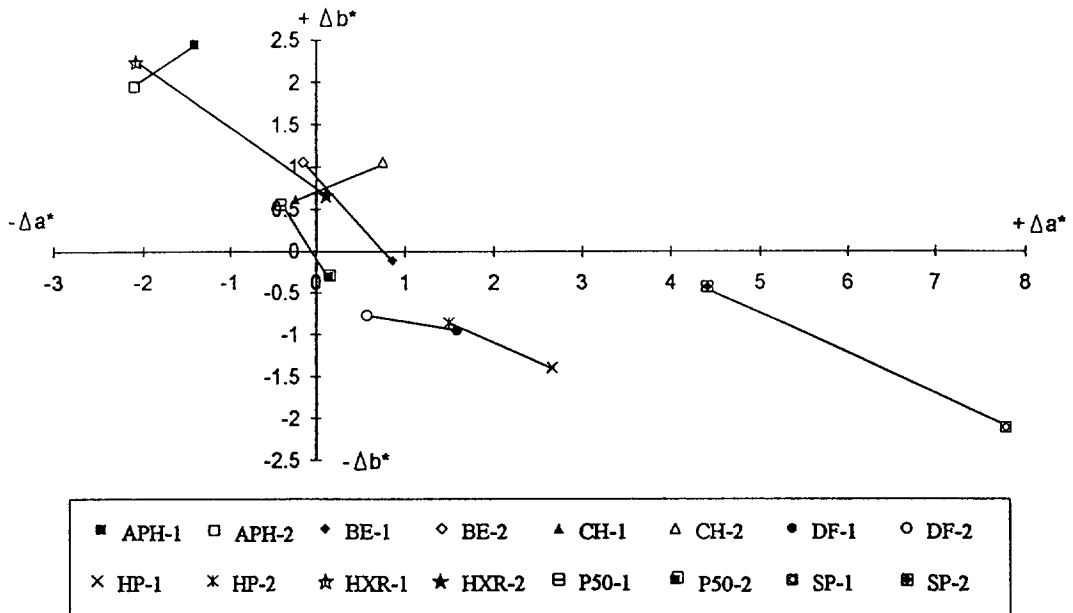


Fig. 1. Graphic representation of the chromatic color changes of group 1 and 2 produced by storing for 30 days in distilled water at 60°C. 1 : Group 1, 2 : Group 2.

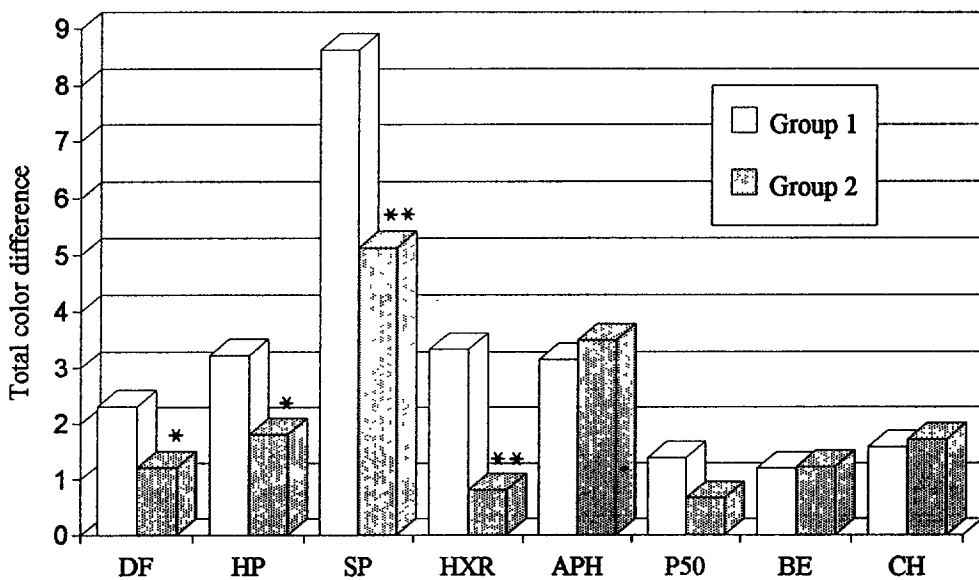


Fig. 2. Total color difference(ΔE^*) in group 1 and 2. * $P < 0.05$, ** $P < 0.01$, compared with Group 1.

Table 4. Result of opacity before and after immersion for 30 days in distilled water and opacity change of group 1 expressed as means

	Y% (b)	Y% (a)	$\Delta Y\%$
DF	58.59(0.77)	59.79(0.40)	1.20(1.02)
HP	62.69(0.41)	63.30(0.19)	0.34(0.48)
SP	61.48(1.03)	63.81(0.34)	2.33(0.82)
HXR	59.77(1.24)	57.32(1.55)	-2.44(0.47)
APH	60.32(0.32)	62.44(0.50)	2.12(0.42)
P50	60.86(1.24)	61.15(1.10)	0.30(0.90)
BE	60.21(0.56)	60.89(0.63)	0.68(0.27)
CH	63.38(0.83)	62.98(1.50)	-0.40(1.71)

Standard deviations are in parentheses.

Y% (b) : Opacity before immersion in distilled water.

Y% (a) : Opacity after immersion for 30 days in distilled water at 60°C.

$\Delta Y\%$: Opacity difference between Y% (a) and Y% (b).

Table 5. Result of opacity before and after immersion for 30 days in distilled water and opacity change of group 2 expressed as means

	Y% (b)	Y% (a)	$\Delta Y\%$
DF	63.53(0.26)	64.78(1.14)	1.24(1.93)
HP	62.51(0.47)	63.07(0.49)	0.56(0.25)
SP	63.57(2.14)	65.72(2.45)	2.15(2.04)
HXR	59.15(1.84)	60.06(1.16)	0.90(0.83)
APH	60.07(0.63)	62.33(1.56)	2.26(1.17)
P50	64.62(0.66)	66.63(1.11)	2.01(0.94)
BE	63.67(0.32)	63.21(1.26)	-0.47(1.06)
CH	69.06(0.53)	68.25(1.02)	-0.82(0.94)

Standard deviations are in parentheses.

Y% (b) : Opacity before immersion in distilled water.

Y% (a) : Opacity after immersion for 30 days in distilled water at 60°C.

$\Delta Y\%$: Opacity difference between Y% (a) and Y% (b).

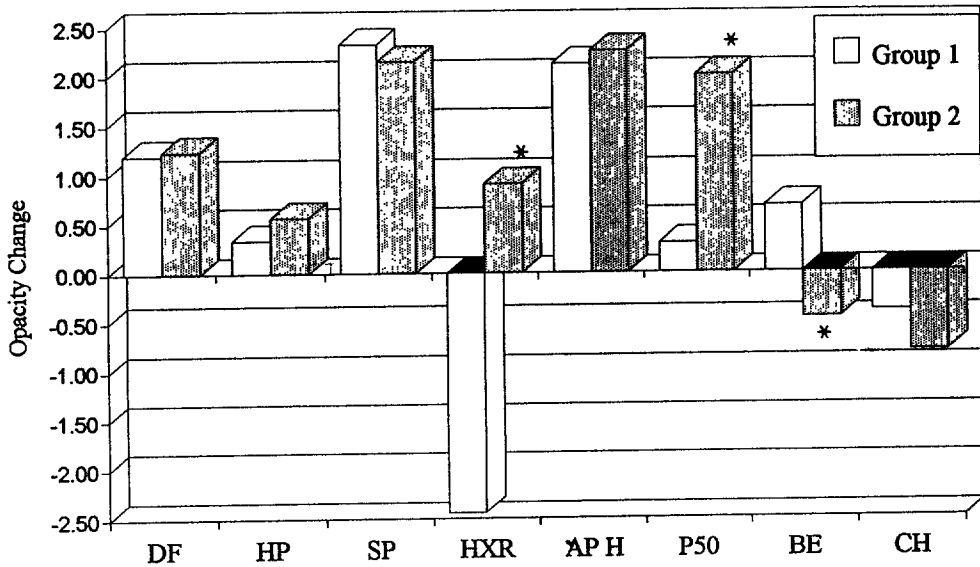


Fig. 3. Opacity change in group 1 and 2. *P<0.01, compared with Group 1.

IV. 총괄 및 고찰

자연치와 가장 유사한 광학적 성질, 특히 색상과 투명도를 갖는 치과용 수복 재료가 심미성이 가장 우수한 재료임은 주지의 사실이다. 복합레진과 치과용 도재에 multilayering technique을 사용하는 것도 이러한 이유에서 자연치와 좀 더 유사한 수복을 얻기 위함이다. 그러나 실제 임상에서 처음 선택된 색상과 투명도가 계속 유지된다는 것은 무척 어렵고 이것이 치과용 심미 수복 재료에 있어서 장차 해결해 나가야 할 중요한 문제점 중의 하나이다.

광중합 복합레진은 광중합 개시제와 광환원제의 빛에 의해 개시되는 반응에 의해 중합된다. 광중합 후 레진의 기질, 기질과 무기 첨가물(inorganic filler)의 결합면의 변성 등에 의한 내인성 변색은 이러한 광중합 개시제와 환원제의 종류와 양에 의해 변색의 정도에 영향을 받는다. Seghi 등¹⁶⁾은 9종의 광중합 레진의 광중합 과정 동안의 변색에 대한 연구에서 사용된 모든 광중합 레진이 광중합 과정 동안 현저한 변색을 보였음을 보고했다. Venz와 Antonucci²⁴⁾는 실험용 광중합 레진을 대상으로 aromatic amine(N, N-dimethylaminobenzoic acid 및 그 유도체, N, N-dimethylaminophenethanol, N, N-dimethylaminoci-

namic acid)을 포함한 복합레진의 변색이 aliphatic amine(N-methyl-diethanolamine, 1, 3-bis(dimethylamino)-2-propanol)을 포함한 복합레진보다 컸으며, 이는 고리 치환분(ring substituents)의 양상과 위치, amine의 함량, 그리고 중합 광선에의 노출 시간에 의존한다고 보고하였다. 또 Ruyter와 Svendsen⁵⁾, 그리고 Germain 등²⁵⁾은 포함된 무기 첨가물의 양이 적거나 레진 기질의 함유량이 많을 수록 색안정성에 나쁜 영향을 미친다고 보고했으며, Øysæd와 Ruyter²⁶⁾는 무기 첨가물의 함량과 수분 흡수에 주로 무기 첨가물과 기질의 결합면이나 레진 기질 자체에서 확산에 의해 일어나며 중합체 기질에 흡수된 수분은 무기 첨가물-기질 간의 결합을 와해시키거나 무기 첨가물을 용해시키고 무기 첨가물의 함량이 적은 레진에서 더 많은 수분 흡수를 보인다고 하였다. 한편 Satou 등¹⁰⁾은 무기 첨가물을 함유하지 않은 5종의 실험용 광중합 레진의 변색에 대한 연구에서 소수성이 큰 재료는 지용성 염료에 더 큰 표면 변색을 보였고 수분 흡수가 큰 재료는 수용성 염료에 더 큰 표면 변색을 보였으며, 또한 수분 흡수성은 접촉각(contact angle)이 클수록 감소하고 수산기(hydroxyl group)가 중요한 역할을 하며 수산기가 없는 레진은 접촉각이 크고 낮은 수분흡수성과 작은 변색을 나

타낸다고 보고하였다. 이상의 연구에서 보고된 바와 같이 수분의 흡수가 색안정성에 좋지 않은 영향을 미친다는 것은 주지의 사실이다.

기질의 수분 흡수에 의한 변색과 더불어 온도 또한 레진의 색안정성에 영향을 미친다. Asmussen¹⁹⁾은 15종의 자가중합형 레진과 광중합 레진을 37°C 물속에 12개월 동안 보관한 경우와 50°C, 60°C, 그리고 70°C 물속에서 1개월 또는 2개월 보관한 가속시험시의 상관관계에 대해 연구하여 이 가운데 50°C에서 2개월간 보관한 경우와 60°C에서 1개월간 보관한 경우가 37°C에서 12개월간 보관한 경우와 유사한 결과를 보인다고 보고했다.

Wozniak 등¹¹⁾은 2종의 acrylic resin의 색변화에 대한 연구에서 냉수에 보관한 시편이 온수에 보관한 경우보다 변색이 작았으며, 자가중합형 레진이 열중합형 레진보다 더 큰 변색을 나타냄을 보고했다. 본 연구에서는 60°C에서 1개월간 보관한 레진의 색변화가 37°C에서 12개월간 보관한 경우와 좋은 상관관계를 갖는다는 Asmussen¹⁹⁾의 가속시험을 토대로 중합 24시간 경과 후와 60°C 증류수에서 30일간 보관한 후에 색의 변화와 opacity 변화를 비교 관찰하였다. 본 연구에 사용된 60°C 증류수에서의 30일간의 기간은 실제 환자에 적용한 시간으로 환산하면 1년 이상의 기간에 해당된다. 그러나 임상적용시 발생할 수 있는 응력의 집중, 변색 물질과 광선에의 노출 그리고 pH나 온도 변화와 같은 외부적 요인들을 배제한 상태에서 증류수에 보관시 발생하는 내적요소에 의한 변색을 관찰하기 위한 실험이므로 실제 임상에서는 복합적인 여러 요인들에 의해 더욱 큰 변색이 초래될 것으로 생각된다.

변색의 정도는 전체 색변화량인 ΔE^* 로 평가되는데 ΔE^* 값은 변색 정도의 육안적 평가에 있어서도 중요한 의미를 갖는다^{27,28)}. Gross와 Moser²⁸⁾는 ΔE^* 값이 0 내지 2이면 변색을 인지할 수 없으며 2 내지 3이면 인지되기 시작한다고 보고했다. Ruyter 등²⁹⁾은 ΔE^* 값 3.3을 허용 상한선이라 했고 ΔE^* 값이 1보다 크면 색의 변화를 인지할 수 있는 수치라고 보고했다. 본 연구 결과 허용 상한선 이상의 ΔE^* 값을 보인 제품은 1군의 SP와 HXR 그리고 2군의 SP와 APH였다. 이 중 가장 적은 무기 첨가물을 함유한 SP가 1, 2군 모두에서 가장 큰 색변화를 보였으며, APH는 1, 2군 모두에서 내부에 많은 백색 기포가 발생되어

육안으로도 쉽게 변색의 구별이 가능했다. 그리고 1, 2군 모두에서 ΔE^* 값 2.0이하의 비교적 작은 색변화를 보인 제품은 BE, CH와 P50이었다. 또한 1군과 2군의 색변화량 비교에서 DF, HP, SP, HXR은 광중합 후 인레이 기법에 의해 부가 중합한 2군의 색변화량이 가시 광선 중합기만으로 중합한 1군에 비해 더 작았으나($P < 0.05$) 나머지 제품들은 유의한 차이가 없었다. Rueggeberg 등³⁰⁾은 광중합한 복합레진을 다시 열처리할 때 발생하는 변색에 관한 연구에서 열처리하지 않은 시편과 비교시 50% 이상에서 약 3정도의 ΔE^* 값을 보였고, 이들 중 초미세입자형 복합레진이 다른 형태의 복합레진보다 더 큰 변색을 보였다고 하였다. 본 연구에서는 가시광선 중합기로 광중합한 후 인레이용 광/열 중합기로 부가 중합하였을 때 0.9에서 3.9까지의 ΔE^* 값을 보였으나 초미세입자형 복합레진과 혼합형 복합레진간의 유의한 차이는 나타나지 않았다.

Peutzfeldt와 Asmussen²⁰⁾은 인레이 기법에 사용되는 3종의 복합레진의 색안정성에 관한 연구에서 자외선을 조사한 경우와 물속에 보관한 경우에 있어서 물속에 보관한 시편이 더 큰 변색을 보였으나 두 방법간의 상관 관계는 없었으며 이중 초미세입자형 복합레진이 가장 큰 ΔE^* 값을 보였다고 보고하였는데, 본 연구에서도 초미세입자형 복합레진들이 대부분 큰 ΔE^* 값을 나타내 Peutzfeldt와 Asmussen²⁰⁾의 결과와 유사하였다.

수복체가 자연스러운 생활력을 지니기 위해서는 적절한 투명도를 가져야 한다. 투명도의 상실은 변색과도 밀접한 관계를 갖는데 일반적으로 투명도는 반대 개념인 opacity나 contrast ratio로 측정된다. Opacity는 재료의 절대적인 특징은 아니며 백색 배경판의 반사율과 시편의 두께에 따라 변한다. ADA의 치과용 시멘트에 대한 규격에서는 1.0mm두께의 시편과 magnesium oxide 표면 반사율의 70%에 해당하는 백색 배경판을 사용하도록 했다³¹⁾. 그러나 이러한 반사율을 가진 백색 배경판은 구하기가 쉽지 않다. 따라서 측정된 opacity의 값과 백색 배경판의 반사율을 이용해 Judd의 공식에 따라 70%의 반사율을 적용한 $C_{0.7}$ 을 얻게 된다²¹⁾. 본 연구에서는 opacity의 변화 정도를 관찰하는데 목적을 두었으므로 1mm 두께의 시편과 88.15% 표면 반사율을 가진 백색 배경판을 사용하여 opacity(Y%)를 산출하였다.

본 연구에서 Opacity의 변화량은 색변화량이 컸던 SP와 APH에서 역시 다른 제품에 비해 더 큰 증가를 보였으며, BE, CH, HP는 양군 모두에서 비교적 작은 opacity 변화량을 보였다. 1군의 CH와 HXR과 2군의 CH와 BE에서는 opacity의 감소를 보였는데, 이는 비록 작은 변화량이지만 투명도가 증가했음을 시사하나 육안으로 투명도의 증가를 확인하기는 어려웠다. 1, 2군의 opacity 변화량 시사하나 육안으로 투명도의 증가를 확인하기는 어려웠다. 1, 2군의 opacity 변화량 비교시 BE, HXR, P50은 양군 간에 유의한 차이를 보였으나($P < 0.05$) 나머지 제품들은 유의한 차이를 보이지 않았다. Ameye 등¹³⁾은 재래형 레진과 초미세입자형 레진에 대한 18개월 동안의 임상 실험에서 초미세입자형 레진의 색안정성이 더 크고, 실험 대상의 12%에서 opacity가 증가되었다고 보고하였다.

본 연구의 결과에 의하면 광/열처리 기법에 의해 부가 중합한 2군의 레진이 1군에 비해 작은 색변화량을 보였는데 특히 초미세입자형 레진에서 이러한 양상이 뚜렷이 나타났다. 이러한 결과는 대부분의 혼합형 복합레진에서는 중합 방법이 색변화에 크게 영향을 미치지 않아 1군과 2군 모두에서 비교적 작은 색변화를 보인 반면, 초미세입자형 복합레진은 중합 방법에 따라 색변화량에 큰 차이를 보여 레진의 중합 정도가 색안정성에 영향을 미침을 시사한다. Opacity의 변화로 관찰한 투명도 변화의 정도는 아직 임상적 허용 한계량에 관한 연구가 미비한 상태이며, SP와 APH를 제외한 대부분의 복합레진들이 1, 2군 모두에서 육안으로 관찰하기 어려운 정도의 작은 변화량을 보여 어떤 중합 방법이 유리한지를 평가하기 어려웠다. 앞으로 레진의 색안정성에 관한 연구는 제품마다 다른 색의 특성 변화를 보이는 근본적인 원인에 대한 연구와 더불어 구강 환경과 유사한 상태에서 복합적인 원인들에 의해 발생하는 색변화를 체계적으로 구명하여야 할 것으로 생각된다.

V. 결 론

3종의 초미세입자형 복합레진(DF, HP, SP)과 3종의 혼합형 복합레진(APH, HXR, P50) 그리고 2종의 인레이용 혼합형 복합레진(BE, CH)을 가시광선 중합기로 광중합한 1군과 가시광선 중합기로 광중합

후 인레이/온레이 기법에 의해 부가 중합한 2군으로 분류하고, 제작된 레진 시편을 중합 직후와 광선이 차단된 60°C 증류수에 30일간 보관한 가속연화(accelerated aging) 후에 분광색채측정기를 사용해 색의 특성 변화를 측정하고 전체 색변화량과 opacity 변화량을 산출하여 변색과 투명도 변화를 비교 분석한 바 다음과 같은 결과를 얻었다.

1. SP와 APS는 양군 모두에서 그리고 DF, HP와 HXR은 1군에서 ΔE^* 값 2.0 이상을 보였으나 나머지 제품들은 ΔE^* 값 2.0 이하를 나타냈다.
2. DF, HP, SP, HXR은 1군이 2군보다 더 큰 전체 색변화량을 보였으나($P < 0.05$) APH, BE, CH, P50에서는 양군 간에 유의한 차이가 없었다($P > 0.05$)
3. 1군의 CH와 HXR과 2군의 CH와 BE에서는 opacity의 감소를 보인 반면, 나머지 제품에서는 opacity의 증가가 관찰되었다.
4. BE, P50 그리고 HXR에서는 1군과 2군의 opacity 변화량이 유의한 차이를 보였으나($P < 0.05$) 나머지 제품에서는 유의한 차이가 없었다($P > 0.05$).

이상의 결과는 본 연구에 사용된 8종의 광중합 복합레진에서 인레이 기법을 사용해 부가 중합한 경우가 가시광선 중합기에 의한 광중합 경우보다 색변화량이 작았고, 모든 제품에서 임상적으로 문제시 될만한 큰 투명도의 변화를 나타내지 않았음을 시사한다.

REFERENCES

1. Leinfelder, K. F., Sluder, T. B., Sockwell, C. L. : clinical evaluation of composite resins anterior and posterior restorative materials. *J. Prosthet Dent.* 33 : 407-416, 1975.
2. Bowen, R. L., Argentar, H. : Amine accelerators for methacrylate resin systems. *J. Dent Res* 50 : 923-928, 1971.
3. Asmussen, E. : Factors affecting the color stability of restorative resins. *Acta Odontol Scand* 41 : 11-18, 1983.
4. Um, C. M., Ruyter, I. E. : Staining of resin-based veneering materials with coffee and tea.

- Quintessence Int 22 : 377-386, 1991.
5. Ruyter, I. E., Svendsen, S. A. : Remaining methacrylate groups in composite restorative materials. Acta Odontol Scand 36 : 75-82, 1978.
 6. Hayashi, H., Maejima, K., Kezuka, K., Ogushi, K., Kono, A., Fusayama, T. : In vitro study of discoloration of composite resins. J. Prosthet Dent 32 : 66-69, 1974.
 7. Dodge, W. W., Dale, R. A., Colley, R. L., Duke, E. S. : Comparison of wet and dry finishing of resin composites with aluminium oxide discs. Dent Mater 7(1) : 18-20, 1991.
 8. Gross, M. D., Moser, J. B. : A colorimetric study of coffee and tea staining of four composite resins. J. Oral Rehab 4 : 311-322, 1977.
 9. 엄정문, 이명중 : 복합 레진 변색에 관한 실험적 연구. 대한치과 의사협회지 15 : 1009-1012, 1977.
 10. Satou, N., Khan, A. M., Matsumae, I., Satou, J., Shintani, H. : In vitro color change of composite-based resins. Dent Mater 5 : 384-389, 1989.
 11. Wozniak, W. T., Muller, T. P., Silverman, R., Moser, J. B. : Photographic assessment of colour changes in cold and heat-cure resins. J. Oral Rehab 8 : 333-339, 1981.
 12. Raptis, C. N., Powers, J. M., Fan, P. L., Yu, R. : Staining of composite resins by cigarette smoke. J. Oral Rehab 9 : 367-371, 1982.
 13. Ameye, C., Lambrechts, P., Vanherle, G. : Conventional and microfilled composite resins. Part I : Color stability and marginal adaptation. J. Prosthet Dent. 46 : 623-30, 1981.
 14. Dennison, J. B., Powers, J. M., Koran, A. : Color of dental restorative resins. J. Dent Res. 57 : 557-562, 1978.
 15. Caul, H. J., Schoonover, I. C. : The color stability of direct filling resins. JDAD 47 : 448-452, 1953.
 16. Seghi, R. R., Gritz, M. D., Kim, J. : Colorimetric changes in composites resulting from visible light initiated polymerization. Dent Mater. 6(2) : 133-137, 1990.
 17. Cooley, R. L., Sandoval, V. A., Barnwell, S. E. : Fluoride release and color stability of a fluoride-containing composite resin. Quintessence Int. 19 : 89, 1988.
 18. Cooley, R. L., Barkmeier, W. W. : Staining of composite and microfilled resin with stannous fluoride. J. Prosthet Dent. 49 : 346-348, 1983.
 19. Asmussen, E. : An accelerated test for color stability of restorative resins. Acta Odontol Scand. 39 : 329-332, 1981.
 20. Peutzfeldt, A., Asmussen, P. A. : Color stability of three composite resins in the inlay/onlay technique. Scnad J. Dent. Res 98 : 257-260, 1990.
 21. Crips, S., Abel, G., Wilson, A. D. : The quantitative measurement of the opacity of aesthetic dental filling materials. J. Dent Res. 58(6) : 1585-1589, 1979.
 22. Farah, J. W., Powers, J. M. : Anterior and posterior composites. The dental advisor. 8(4) : 1-6, 1991.
 23. Introduction Manual of Hunter Lab color QUEST Sphere spectrophotometer. Hunter Associates laboratory Inc., Reston, 1989.
 24. Venz, S., Antonucci, J. M. : Effect of photoaccelerators on curing and discoloration of composites. J. Dent. Res. 66 : 246, 1987.
 25. St. Germain, H., Swartz, M. L., Phillips, R. W., Moore, B. K., Roberts, T. A. : Properties of microfilled composite resins as influenced by filler content. J. Dent Res. 64 : 155-160, 1985.
 26. Øysæd, H., Ruyter, I. E. : Water sorption and filler characteristics of composites for use in posterior teeth. J. Dent Res. 65 : 1315-1318, 1986.
 27. 김영해 : Veneer resin의 색안정성에 관한 연구. 대한치과보존학회지 16 : 1-5, 1991.
 28. 박도양 : 실용색채학, 서울, 반도 출판사, pp. 100-120, 1992.

29. Ryter, I. E., Nilner, K., Möller, B. : Color stability of dental composite resin materials for crown and bridge veneers. *Dent Mater* 3 : 246 – 251, 1987.
30. Rueggeberg, F. A., Harvey, D. K., Evans, A. L. : Color change in post-cure heat-treated resin composites. *Am J Dent* 4(4) : 171–176, 1991.
31. Report of Councils and Bureaus : Specification No. 27 for direct filling resins. *JADA* 94 : 1191 – 1194, 1977.