테이프형 유리침투 알루미나 코아도재의 물성 및 반복피로 특성

연세대학교 대학원

치 의 학 과

오 남 식

테이프형 유리침투 알루미나 코아도재의 물성 및 반복피로 특성

지도 이 호 용 교수

이 논문을 박사 학위논문으로 제출함

2002년 6월 일

연세대학교 대학원

치의학과

오 남 식

오남식의 박사 학위논문을 인준함

심사위원____________________인

심사위원____________________인

심사위원____________________인

심사위원____________________인

심사위원____________________인

연세대학교 대학원

2002년 6월 일

감사의 글

이 논문이 완성되기까지 많은 분들께서 도움을 주셨습니다. 먼저 높으신 학문과 덕망으로 세심한 배려와 지도를 베풀어 부족한 저를 이끌어주신 이호용 교수님께 깊은 감사를 드립니다. 그리고 늘 관심과 격려로 힘들 때 마다 용기를 주시고 관심을 보여주신 이근우 교수님께도 깊은 감사를 드립니다. 또 바쁘신 중에도 실험과 자료 정리에 관심과 조언을 아끼지 않으신 한국과학기술연구원의 김대준 박사님께도 무한한 감사를 드립니다. 한종현, 김광만 교수님의 논문에 대한 통찰과 지적은 논문의 완성도를 더욱 높여주셨습니다. 세심한 지적과 배려에 깊이 감사 드립니다. 또 어려운 여건에서도 실험에 많은 시간과 노력을 아끼지 않은 박일석 연구원, 그리고 바쁠 때 항상 저의 옆에서 힘이 되어준 보철과 의국원들에게도 감사의 뜻을 전합니다. 그리고 보철학교실의 한동후 교수님의 지속적인 관심과 배려에도 감사 드리며 문홍석, 심준성 교수님의 관심과 배려에도 감사 드립니다. 또 실험 초기 어려움이 있었을 때 세라믹 실험에 대한 많은 조언을 주셨고 교수님으로서, 선배님으로서 조언과 격려를 아끼지 않으셨던 전영식 선생님께도 감사 드립니다.

그리고 오늘의 저가 있도록 많은 가르침을 주셨던 김성길, 서병길 은사님, 항상 어려울 때마다 저에게 힘을 주시고 용기를 북돋워주신 양가 부모님께도 감사 드립니다. 끝으로 옆에서 항상 힘이 되어주고 논문에 집중할 수 있도록 배려를 아끼지 않은 아내와 딸 자은, 지수에게 무한한 애정과 사랑을 느끼며 이 논문을 바칩니다.

2002년 6월

저자 씀

목차

그림 목차

표 목차

국문요약

테이프형 유리침투 알루미나 코아도재의 물성 및 반복 피로 특성

최근 심미성에 대한 요구도가 높아지면서 전통적인 금속도재관보다 심미성, 마모저항성 및 화학적 안정성이 더 우수한 전부도재관의 사용이 증가되고 있으며 여러 종류의 시스템이 소개되고 있으나 아직 전부도재관의 경우 특히 구치부관과 고정성 국소의치에서 임상적 성공을 얻는 것은 금속도재관에 비해 매우 어렵다. 그러므로 파절에 대한 정량화된 연구가 필요하나 아직 그에 대한 연구는 드물다.

이에 본 연구의 목적은 환경 친화적인 수계 공정의 테이프 캐스팅으로 전부도재관을 위한 알루미나 테이프 제조 시 첨가물들의 적절한 조성을 실험적으로 규명하고 그에 따른 물리적 특성을 관찰하고 또 구강의 저작 상황과 비슷한 반복 피로시험을 통해 재료의 내구성을 예측하고, 이미 임상적으로 널리 사용되어지고 있는 slip 캐스팅 방법의 In-Ceram 시스템과 비교하여 고정성 국소의치로서 임상 적용 가능성을 실험적으로 알아보고자 하였다.

실험 방법으로 먼저 알루미나 테이프 제조 시 조성 즉 a/(a+o) (a=알루미나 분말 무게; o=첨가 유기물 무게) 비와 b/(b+p) (b=첨가 유기물 중 결합제의 무게; p=첨가 유기물 중 가소제의 무게) 비의 변화에 따른 테이프의 성형성, 인장강도와 수축률을 조사하여 첨가물의 조성을 결정하였다. 다음으로 결정된 조성으로 제조된 알루미나 테이프의 열팽창계수, 파괴인성, 이축 굴곡강도 값을 측정하였고 반복 부하 후에 이축 굴곡강도 값을 측정하였다. 반복 부하는 1~9 kg의 힘을 10^2부터 10^6까지 10 Hz로 haversinusoidal 형태로 가하였다. 이들 값을 In-Ceram 시스템과 비교하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

1. 수계 알루미나 테이프의 a/(a+o)와 b/(b+p)비의 변화에 따른 테이프 성형성, 접착성 등의 항목을 평가하고, 인장강도 및 수축률을 측정하여 a/(a+o)=0.840, b/(b+p)=0.5에서 치관 제조용으로 가장 우수한 특성의 세라믹 테이프를 얻을 수 있었다.

2. 최적의 조성으로 제조한 알루미나 테이프의 선수축률은 0.29%로 In-Ceram의 0.3%와 차이가 없었다.
3. 알루미나 테이프 소결체의 열팽창계수는 7.3×10^{-6}/℃, 유리 침투 후는 7.5×10^{-6}/℃ 로 In-Ceram 복합체의 7.4×10^{-6}/℃와 비슷하였다.
4. 알루미나 테이프 복합체의 파괴인성은 4.6 ± 0.05 MPa·$m^{1/2}$로 In-Ceram 복합체의 5.8 ± 0.14 MPa·$m^{1/2}$ 보다 낮은 값을 보였으나 통계적 유의성은 없었다 ($p > 0.05$).
5. 알루미나 테이프 복합체의 이축 굴곡강도 측정값은 498 ± 32 MPp 이었으며 In-Ceram 복합체의 경우는 505 ± 33 MPa로 차이가 없었다 ($p > 0.05$).
6. 알루미나 테이프 및 In-Ceram 복합체에서 반복하중을 가한 후 이축 굴곡강도 값을 측정한 결과 파절 강도 값의 감소는 없었다 ($p > 0.05$).
7. Weibull 분석에서 알루미나 테이프 복합체의 Weibull modulus 값은 17.9 In-Ceram 복합체는 19.7로 나타났다.
8. 전자주사사현미경으로 미세구조를 관찰한 결과 테이프로 제작된 복합체는 3-4 μm의 타원형 구조를 보였으나 In-Ceram 복합체는 장방형의 구조였으며 알루미나 입자간의 간격은 테이프 복합체가 In-Ceram의 경우 보다 더 큰 양상을 보였다.

이상의 결과로 보아 수계 테이프 캐스팅으로 제조된 알루미나-유리 복합체는 In-Ceram 알루미나-유리 복합체와 같이 전치부 고정성 국소의치에 적용이 가능할 것으로 생각되며 반복되는 교합력이 가해지는 구강 내에서도 일정기간의 수명을 유지할 것으로 사료된다.

핵심되는 말: 전부도재관, 인세람, 알루미나 테이프, 반복 피로, 굴곡강도, 테잎 캐스팅

테이프형 유리침투 알루미나 코아도재의 물성 및 반복 피로 특성

연세대학교 대학원 치의학과
(지도 이 호 용 교수)

오남식

I. 서론

18세기 초에 처음으로 치과에 도재의 사용이 시도된 이후로 그 사용 빈도와 범위가 점차 증가하고 있다. 그러나 도재는 금속에 비해 심미적으로 우수하지만 낮은 인장강도와 파절 저항성 등의 물리적인 취약점 때문에 단독으로 사용되지 못하고 금속구조물에 도재를 용착시킨 형태의 금속도재관이 많이 사용되어져 왔다[1).

대표적인 금속-도재수복물로는 내부 금속 코핑에 도재를 용착시킨 도재소부전장관(porcelain-fused-to-metal crowns)이 있으며 강도가 높고 제작하기 쉬워서 지금도 많이 사용되어지고 있다. 그러나 이런 금속-도재 수복물은 내부 금속 코핑에 의해 보철물을 통한 빛의 투과가 제한되고 빛의 반사도를 높여 자연치아와 유사한 투광도와 색조를 얻을 수 없어서 심미적인 한계를 가지고 있다[2). 또 내부에 사용된 금속에 의해 과민반응이 일어날 수 있으며 이로 인해 치은의 변색 등이 올 수 있다. 그러므로 특히 전치부에서 금속도재관으로 높은 심미적 요구도를 충족시키기에는 한계가 있다[2).

최근에는 심미성에 대한 요구도가 높아지면서 전치부에서 대부분의 수복물을 차지하던 전통적인 금속도재관이 상대적으로 심미성, 마모저항성, 화학적 안정성이 더 우수한 전부도재관으로 점점 대체되고 있다[3).

최근 금속도재관 보다 비교적 빛의 투과도가 높은 여러 종류의 전부도재관이 소개되고 있으나 금속도재관에 비해 강도가 떨어지며 제작방법의 까다로움과 제작 시 고가의 특수장비를 필요로 하는 경우가 많아서 아직 금속도재관을 완전히 대체하지는 못하고 있다. 이러한 이유로 전부도재관의 강도를 증가시키려는 부분에 대한 많은 연구가 진행 중에 있으며 그에 따른 새로운 재료 및 제작 기법들이 계속해서 소개되고 있다[4-9].

초기에 개발된 전부도재관들은 약한 파절강도 때문에 그 사용이 전치부 단일치아에 국한되었다. 그래서 사용이 보편화 되지 못하고 극히 제한적이었다. 그러나 최근에 전치부 계속가공의치에도 사용 가능한 재료들이 소개되면서 그 적용범위가 전치부 계속가공의치 및 구치부의 수복으로까지 확대되고 있다.

근래에 소개되어지고 있는 전부도재관 중 단일치아 및 전치부 고정성 가공의치에 사용이 가능한 종류로는 IPS Empress 2 System (Ivoclar, Liechtenstein)과 In-Ceram System (Vita Zahnfabrik, Bad Säckingen, Germany) 등이 있으며 copy milling system으로 Celay가 있다. 레진과 세라믹이 혼합된 Ceramic Optimized Polymer (Ceromer)와 섬유강화형 복합레진 (Fiber Reinforced Composite, FRC) 계열의 Targis-Vectris (Ivoclar-Vivadent, Liechtenstein) 등도 고정성 가공의치에 사용되어지고 있다.

각 종류별 특징으로 먼저 IPS Empress System은 백류석(leucite) 결정을 도재관 내부로 분산시켜 강도를 증강시킨 것으로 작업모형에서 직접 왁스를 조각, 매몰하여 소환하는 lost-wax 기법 및 진공 압착법으로 치아 색과 유사한 도재 ingots을 사용하여 주조하는 가열 가압 백류석 강화 도재로 형태 재현이 좋고 채색도 가능하므로 색조의 재현성도 좋아서 심미적으로 매우 우수하나 파절강도는 160-180 MPa 정도로 가공의치에는 사용하기 어렵고 전치부 단일 치아의 수복만 가능하다는 단점이 있으며 진공 압착을 위한 특수 장비를 필요로 한다[6, 10]. 최근에는 강도가 증가된 IPS Empress 2 System (Ivoclar, Lichtenstein)이 개발되어 소개되었으며 제조과정은 처음의 Empress System과 비슷하나 ingots의 화학적 양상이나 결정 구조는 전혀 다른 형태를 보인다. Ingot은 lithium disilicate crystal (SiO_2-Li_2O) 구조를 가지며 긴 결정체들이 sintering과 heat pressing 과정 중에 60 vol% 까지 증가하여 높은 강도와 파괴인성을 갖는데 중요한 역할을 한다. 이들의 flexural strength는 350 ± 50 MPa로

전치부 계속가공의치에 사용 가능하다11-13).

In-Ceram 시스템은 알루미나 코아에 유리를 침투시켜 강화시킨 방법으로 심미성 및 강도가 우수하여 전치부 계속가공의치에도 사용할 수 있으며 적합도 또한 우수하다14-16). 그리고 알루미나 코아는 슬립 캐스팅 기법으로 제작하게 되며, 이 방법은 알루미나 분말을 액체와 혼합하여 현탁액(slip)을 만들고 기공이 많은 석고다이(die)에 현탁액을 도포하면 액체는 석고 다이에 흡수되면서 코아를 형성하는 기법이다. 그러나 이 방법은 조작이 어렵고 코아의 정확한 두께 조절이 용이하지 않으며, 현탁액을 다이에 도포할 때 도포하는 순서에 따라 양파껍질 양상의 구조(onion shell layered structure)를 갖게 되는 경우가 있어 이로 인해 물성에 영향을 줄 수 있으므로17) 숙련된 조작을 위해서는 많은 경험을 필요로 하게 된다.

이러한 제작상의 어려움을 해결하기 위한 한 방법으로 copy milling 을 이용한 Celay 시스템이 소개되었다18). 그러나 이것 역시 밀링을 위한 고가의 장비가 필요하며 추가 작업이 필요하다는 단점을 가지고 있다.

또 다른 방법으로 CAD-CAM 시스템들도 소개되고 있다19-21). 그 중의 하나로 알루미나를 고온 고압에서 압축시켜 강도와 투광도를 증가시킨 Procera AllCeram crown system (Nobel Biocare, Goteborg, Sweden)이5, 22, 23) 소개 되었으나 알루미나를 고온 고압에서 압축 소결시키기 위한 장비 및 알루미나의 소결 수축이 15-20 %로 매우 큰 편이므로 coping 제작 과정에서 소결 수축의 보상을 위한 CAD-CAM 장비가 필요하며 flexural strength는 687 MPa 정도로 높으나23) 아직 계속가공의치에는 적용시키지 못하고 단일치아 수복에만 국한되어 있으며 수복물의 적합도는 전치부에서는 80-95 μm, 구치부에서는 90-145 μm로 보고되고 있다24).

이런 제조과정의 어려움을 개선하고자 In-Ceram 시스템의 장점을 가지며 제조과정상의 복잡함을 개선한 방법으로, 적절한 두께를 가지는 알루미나 테이프를 다이에 압접시켜 코아를 제작하는 방법이 개발되어 소개되었다15, 25-28). 그러나 사용된 알루미나 테이프는 제조 시 유기용매를 사용한 비수계 공정으로 테이프 제조 시 환경 및 인체에 유해한 문제점이 있었다.

이렇듯 여러 종류의 시스템이 소개되고 있으나 아직 전부도재관의 경우 특히 구치부관과 고정성 국소의치에서 임상적 성공을 얻는 것은 금속도재관에 비해 매우 어렵다29-31). 또 재조 과정 상의 문제 뿐만 아니라 파절에 대한 정량화된 연구

도 필요하나 아직 그에 대한 연구는 드물다.

그러므로 본 연구는 과거의 비수계보다 더 환경 친화적인 물을 용매로 사용하는 수계 공정의 테이프 캐스팅으로 전부도재관용 알루미나 테이프 제조 시 첨가물들의 적절한 조성을 실험적으로 규명하고 그에 따른 물리적 특성을 관찰하고 또 구강의 저작 상황과 비슷한 반복 피로시험을 통해 재료의 내구성을 예측하고, 이미 임상적으로 널리 사용되어지고 있는 slip 캐스팅 방법의 In-Ceram 시스템과 비교하여 고정성 국소의치로서 임상 적용 가능성을 실험적으로 알아보고자 하였다.

II. 실험재료 및 방법

2.1 알루미나 테이프의 첨가물 조성 결정

2.1.1 수계성 알루미나 테이프의 제조

알루미나 분말은 평균 직경이 3 μm인 AL-M43 (Sumitomo, Japan)을 사용하였고 용매로는 증류수를 사용하였다. 수계용 결합제로는 acrylic emulsion (AS50B, Okong, Incheon, Korea)을 사용하였다. 비닐계의 결합제와는 달리 아크릴계 결합제는 안정화된 에멀젼 상태이기 때문에 그대로 정량하여 슬러리를 제조하였다. 가소제로는 glycol 계의 Benzoflex-50 (Velsicol Chemical Corp., U.S.A)이 사용되었고 분산제로는 polycarboxylic acid 계를 사용하였다 (Table I).

테이프 캐스팅을 위한 슬러리는 알루미나, 용매 그리고 분산제를 0.25 wt% 첨가한 후, 4시간 볼밀링을 통하여 얻었다. 1차 볼밀링 후 슬러리는 alumina/(alumina+organics) 무게비 즉 a/(a+o) 및 유기 첨가제(organics) 중 binder/(binder+plasticizer) 무게비 즉 b/(b+p)의 변화에 따라 가소제를 첨가하여 1시간 볼밀링 한 후 결합제를 넣고 다시 1시간 볼밀링을 행하였다. 혼합과정에서 유입되는 공기와 용매의 증기압에 의하여 발생되는 기포를 제거하기 위해 미량의 소포제를 첨가하고 진공 하에서 1시간 30분 동안의 탈포공정을 수행하였다. 이때 균일한 탈포를 위해 슬러리를 250 rpm의 일정속도로 교반 하였다. 탈포과정 동안 슬러리 내의 기포제거 뿐만 아니라 용매의 증발도 동시에 발생하게되어 슬러리의 점도가 증가하게 되므로 점도 변화의 관찰을 통하여 최적공정시간을 결정하였다.

최적의 탈포공정을 거친 슬러리를 닥터블레이드를 사용하여 30 cm/min의 속도로 성형하였다. 성형한 테이프는 24시간 공기 중에서 건조하였으며, 건조 후 테이프의 두께는 약 0.5 mm 가 되도록 하였다 (Fig.1).

Table I. Slurry constituent for aqueous-based alumina tapes

Constituent	Materials
Ceramic Powder	Alumina
Solvent	Distilled water
Binder	Acrylic emulsion
Plasticizer	Glycol type
Dispersant	Polycarboxylic acid

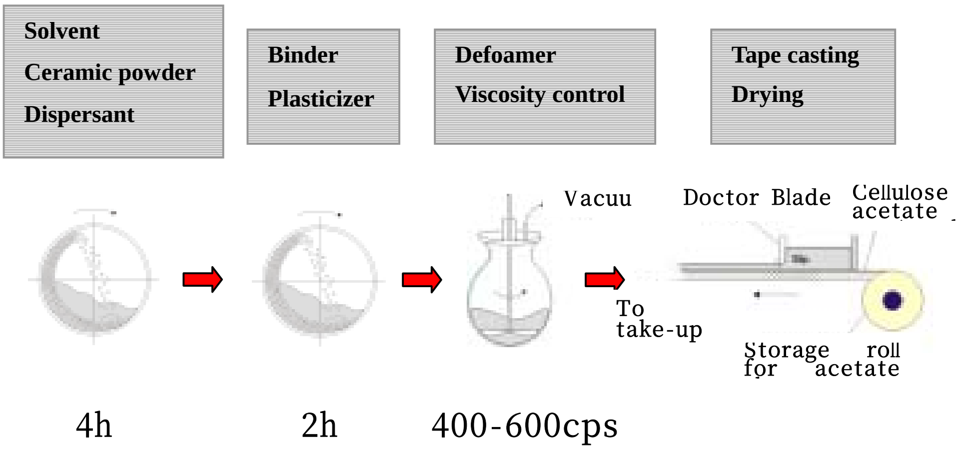


Fig. 1. Fabrication process of ceramic tapes.

2.1.2 알루미나-유리 복합체 제조

제조된 테이프를 80℃에서 25 MPa로 5분간 열간 정수압을 가한 후 35 mm×10 mm의 직사각형으로 재단한 시편을 다음과 같은 조건으로 소결 하였다. 1℃/min의

속도로 상온에서 500℃까지 승온 하여 1시간 유지하고, 9℃/min의 속도로 500℃에서 1100℃까지 승온시켜 2시간 유지한 후 노냉 하였다. 1차 소결체 위에 용융침투 유리 분말과 증류수를 섞어 바른 후 1080℃에서 2시간 유지하여 유리가 시편 내로 용융 침투되어 복합체가 형성되도록 하였다. 알루미나 유리 복합체 시편은 1μm의 다이아몬드 슬러리로 최종 경면 가공하였으며 가공 중의 잔류응력을 제거하기 위해 960℃에서 10분간 열처리 하였다. 경면 가공한 후 복합체의 두께는 0.3mm 이었다.

2.1.3 결합제 및 가소제 함량에 따른 성형성 평가

알루미나 테이프의 물성 평가는 테이프 제조 시 a/(a+o)와 b/(b+p)의 변화에 따른 테이프 성형성, 접착성 등의 항목을 평가하여 조작의 용이성을 종합적으로 평가하였다.

2.1.4 결합제 및 가소제 함량에 따른 인장강도 측정

결합제에 따른 테이프의 특성을 알아보기 위해 인장강도를 측정하였다. 즉 a/(a+o)와 b/(b+p)의 변화에 따른 알루미나 테이프의 인장강도를 측정하여 조성이 인장강도에 미치는 영향을 평가하였다. 인장강도는 ASTM (American Society for Test and Material) 규격(D-638 IV)에 의거 dog bone 형태로 제조된 시편을 만능시험기 (Instron Model 4465, Instron Corp., Canton, MA, U.S.A.)에서 인장속도를 50 mm/min으로 유지했을 때 일어난 파괴강도로 식 (1)에 의해 구하였다.

$$\text{인장강도} \ \sigma_f = \frac{P}{A} \tag{1}$$

P : 인장 파괴시의 하중

A: 시험편의 단면적

2.1.5 결합제 및 가소제 함량에 따른 수축률 측정

선수축률은 a/(a+o)와 b/(b+p)의 변화에 따라 각 조성에서 알루미나 테이프를 제작하고 각 3개씩의 35 mm × 10 mm의 직사각형으로 제단한 시편을 1100℃에서의 소결 공정 전 · 후의 장축 길이를 micrometer가 장착된 현미경 (Leica, VMM 50, Austria)으로 측정하여 식 (2)에 의해 구하였다.

$$L = \frac{A_0 - A}{A_0} \times 100 \qquad (2)$$

L: 선 수축률 (%)

A_0: 소성 전 시편의 길이 (mm)

A: 소성 후 시편의 길이 (mm)

2.2 최적의 조성으로 제조된 알루미나 테이프의 물성 및 반복피로 특성

2.2.1 알루미나 테이프 복합체 시편 제조

앞 실험결과에 따라 최적의 조성으로 제조한 알루미나 테이프로 열팽창계수, 파괴인성, 강도 시험 및 피로 시험을 위한 시편을 위와 같은 방법으로 제조하였다. 열팽창계수측정을 위한 시편은 알루미나 테이프를 적층하고 열간정수압을 가한 후 5 mm × 5 mm × 5 mm 크기로 제작하였다. 파괴인성, 이축 굴곡강도 측정 및 피로시험을 위한 시편은 위에서 제조된 테이프 세 장을 적층하여 열간정수압을 가한 후 직경 18 mm의 원통으로 재단한 후 같은 방법으로 시편을 제작하였다. 이때 최종 경면 연마 가공된 시편의 두께는 0.7 mm였다.

2.2.2 In-Ceram 복합체 시편 제조

In-Ceram의 알루미나 분말을 제조사의 지시대로 혼합하여 알루미나 슬러리를 제조하였다. Slip 캐스팅으로 시편 성형을 위해 지름 18 mm의 원통형 실리콘 몰드를 만들고 원통 내부는 같은 지름의 다공의 석고 원기둥을 넣어 바닥을 만들었다. 몰드에 제조된 알루미나 slip을 도포하여 수분이 다공의 석고로 흡수되면 몰드 내에서 알루미나 원판을 분리하여 알루미나 시편을 제작하였다.

제작된 알루미나 원판은 제조사의 지시대로 건조 소결 시키고 다시 In-Ceram 유리를 사용하여 복합체를 제조하였다. 시편의 가공은 알루미나 테이프와 같이 1 μm의 다이아몬드 슬러리로 최종 경면 가공하였으며 가공 중의 잔류응력을 제거하기 위해 960℃에서 10분간 열처리 하였다. 경면 가공한 후 복합체의 두께는 0.7 mm 이었다.

2.2.3 열팽창계수 측정

위에서 제조된 5 mm × 5 mm × 5 mm 크기의 알루미나 테이프 소결체를 실온(25℃)에서 분당 10℃의 승온 속도로 600℃까지 승온시켜 열팽창률을 측정한 후 열팽창계수를 구하였다.

2.2.4 파괴인성(fracture toughness) 측정

파괴인성은 indentation strength 방법으로 측정하였다[32, 33)]. 원판형 소결체 중심부에 비커스 압흔체를 이용하여 균열의 길이가 압흔체 대각선의 길이보다 2.5배가 되는 49 N의 하중으로 압입 후 수분에 의한 균열 전파를 방지하기 위하여 실리콘 오일을 도포하였다. 압흔한 시편들은 이축강도 측정법과 같은 방식으로 파단한 후 Chantikul 등[32)]이 제안한 식 (3)을 이용하여 파괴인성 값을 계산하였다.

$$K_{1C} = 0.59 \times \left(\frac{E}{H}\right)^{1/8} \times \left(\sigma P^{1/3}\right)^{3/4} \qquad (3)$$

K_{1C} : 파괴인성

σ : 강도(측정값)

P : 압흔시 하중(49 N)

$\frac{E}{H}$: 탄성계수와 경도의 비

파괴인성 값 결정시 탄성계수와 경도의 비는 시편 표면에 Knoop 압흔체를 이용하여 압흔체 모서리 부분에 균열이 발생하지 않는 하중의 조건에서 압입한 후 압흔체의 대각선의 길이를 측정하여 Marshall 등33)이 제안한 식 (4)에 의거 결정하였다.

$$\frac{b'}{a'} = 0.14 - 0.45 \times \left(\frac{H}{E}\right) \qquad (4)$$

b' : Knoop 압흔체의 짧은 대각선의 길이

a' : Knoop 압흔체의 긴 대각선 길이

H : 경도

E : 탄성계수

$$\therefore \quad \frac{E}{H} = \frac{0.45}{0.14 - \frac{b'}{a'}}$$

2.2.5 이축 굴곡강도(biaxial flexural strength) 측정

복합체의 강도는 이축 굴곡강도(biaxial flexural strength)로 측정하였다. 측정 시 시편을 고정하는 test-fixture는 중심으로부터 6 mm의 거리에 120 ° 각도마다 2 mm 크기의 금속 구를 위치시켜 시편을 지지하도록 하는 하부의 지지 부위와 중앙에 직경 1.6 mm의 평평한 ram tip을 갖는 상부의 응력 적용 부위로 구성되어있다. 측정 시 시편 표면과 ram tip 사이에 응력이 균일하게 분포할 수 있도록 polyethylene film을 삽입하였다. Crosshead 속도는 시편 두께와 modulus에 따라 ASTM 표준 그래프에 의해 결정하였으며[34, 35], 실험 후 강도 값은 다음 식 (5)를 이용하여 결정하였다[36].

$$\sigma = -0.2387 \times l \times \frac{(X - Y)}{d^2} \tag{5}$$

여기서 l 은 파단 시 하중 (N), d 는 시편의 파괴 원에서의 두께 (mm)이다. 그리고 X 와 Y 는 다음 방정식 (6)과 (7)에 의해 결정되는 상수이다.

$$X = (1+\nu)\ln\left(\frac{r_2}{r_3}\right)^2 + \left[\frac{(1-\nu)}{2}\right]\left(\frac{r_2}{r_3}\right)^2 \tag{6}$$

$$Y = (1+\nu)\left[1 + \ln\left(\frac{r_1}{r_3}\right)^2\right] + (1-\nu)\left(\frac{r_1}{r_3}\right)^2 \tag{7}$$

여기서 ν 는 포이슨 비 (0.23), 그리고 r_1 은 각각 하부지지 부위에서 3개의 steel ball들이 이루는 원의 반지름 (6 mm), r_2 는 ram tip의 반지름 (0.8 mm), r_3 는 시편의 반지름이다.

강도 결정에 사용된 각 조성의 최소 시편의 수는 5개씩 이었다.

2.2.6 피로시험 후 굴곡강도 측정

위에서 제조한 In-Ceram 및 알루미나 테이프의 가공된 원형 시편 25 개씩을 각 5개씩 나누어 반복하중의 횟수에 따라 10^2부터 10^6회까지 다섯 군으로 나누고 각 군에서 5개의 시편에 반복하여 10^2부터 10^6회까지 하중을 가하였다. 측정 시 시편 고정을 위해 사용된 test-fixture는 강도시험에서 사용된 것과 같은 형태의 biaxial zig로 시편과 접촉되는 부분은 둥근 형태를 갖고 접촉기구의 피로를 최소화하기위해 tungsten carbide 구를 사용하였다. 반복되는 하중을 가하기 위해 유압만능시험기 (Instron Model 8871, Instron Corp., Canton, MA, U.S.A.)를 사용하였다. 먼저 시편을 시험기의 장축에 수직으로 중앙에 위치되도록 고정시키고 접촉구가 시편에 가볍게 접촉하도록 하였다 (Fig. 6).

반복하중은 10 Hz의 주파수로 haversinusodial 곡선의 형태로 하중을 가하였다. 가해지는 하중은 최소값 1 kg에서 최대값 9 kg의 하중이 반복해서 시편에 가해지도록 하였다. 그리고 각 군에 따른 횟수별로 시편에 반복 하중을 가한 다음 다시 위와 같은 방법으로 이축 굴곡강도 시험을 시행하여 이때의 파절강도 값을 기록하였다. 두 군의 값들은 SAS v8.1을 이용하여 비모수 통계분석법인 Wilcoxon signed rank test로 95%의 신뢰구간에서 검증하였다.

2.2.7 Weibull 분석

각 재료의 파괴확률(failure probability)을 분석하기 위해서 Weibull 분석을 하였다. Weibull modulus를 Weibull regression 분석법으로 구하였다. Weibull 분포는 다음 식 (8)로 정의가 가능하다.

$$P_j = \frac{j}{N+1} \qquad (8)$$

P_j : j 번째 강도를 갖는 시편의 누적 파괴 확률

N : 시편 수

j: N개 시편의 강도 크기 순서 중 j 번째

$\ln\ln\left[\frac{1}{(1-P_j)}\right]$를 Y축으로 하고 ln(j 번째 시편의 굴곡강도 (MPa))를 X 축으로 하는 그래프를 그리면 그래프의 기울기인 Weibull modulus 즉 m 값을 구할 수 있다.

2.2.8 파절면 및 미세구조 관찰

모든 시편의 파절 양상을 육안 및 광학현미경으로 관찰하였고, 복합체의 조직을 금으로 도금한 후 주사전자현미경(SEM imaged with back-scattered electrons)으로 파절면을 관찰하였다.

III. 연구 성적

3.1 알루미나 테이프의 첨가물 조성 결정

3.1.1 결합제 및 가소제 함량에 따른 성형성

수계용 아크릴계 세라믹 테이프의 a/(a+o)와 b/(b+p)비의 변화에 따른 테이프 형성의 유무, 접착성, 180°로 접었을 때의 터짐성 등의 항목을 종합하여 3단계로 평가하여 아래와 같은 표를 얻었다 (Table II). 표에서 나타난 바와 같이 a/(a+o)=0.840, b/(b+p)=0.5에서 치관 제조용으로 가장 우수한 특성의 세라믹 테이프를 얻을 수 있었다.

Table II. Formability of tapes in terms of a/(a+o) and b/(b+p) ratios (a: alumina o: organic additives, b: binder, p: plasticizer)

a/(a+o b/(b+p	0.83	0.84	0.85	0.86	0.87	0.88
0.3				▽	▽	
0.4	▤	▤	▽	▽	▽	
0.5	▤	○	▲	▲	▤	
0.6	▲	▲	▲	▤	▤	
0.7	▤	▲	▤	▽	▽	
0.8	▤	▲		▽	▽	▽

(○ excellent, ▲ high, ▤ medium, ▽ low)

3.1.2 결합제 및 가소제 함량에 따른 인장강도

계용 아크릴계 세라믹 테이프의 b/(b+p)가 0.5로 고정하였을 때 a/(a+o)의 변화에 따른, 그리고 a/(a+o)가 0.840으로 고정되었을 때 b/(b+p)의 변화에 따른 인장강도 값을 측정하여 다음과 같은 값을 얻었다. 테이프의 강도는 알루미나의 함량보다는 첨가 유기물 중 결합제의 양에 크게 영향을 받음을 알 수 있다.

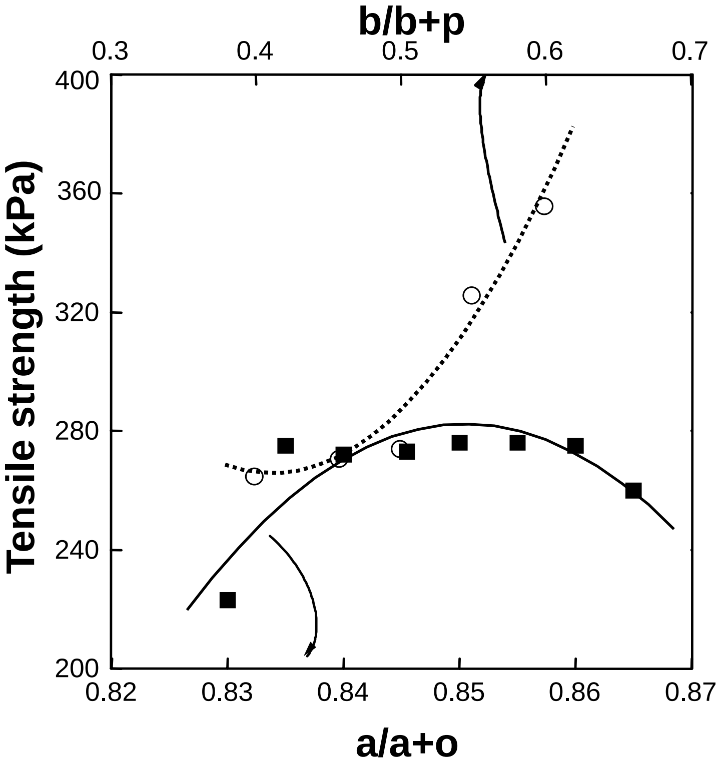


Fig. 2. Tensile strength of alumina tapes as a function of a/(a+o) and b/(b+p) ratios (a: alumina o: organic additives, b: binder, p: plasticizer).

3.1.3 결합제 및 가소제 함량에 따른 수축률

유기물 조성에 따른 수축률은 Fig. 3에 나타내었다. 알루미나의 함량이 증가하면 수축률이 감소함을 나타내었고 유기물에서는 결합제의 함량이 증가하면 수축률이 증가하였다.

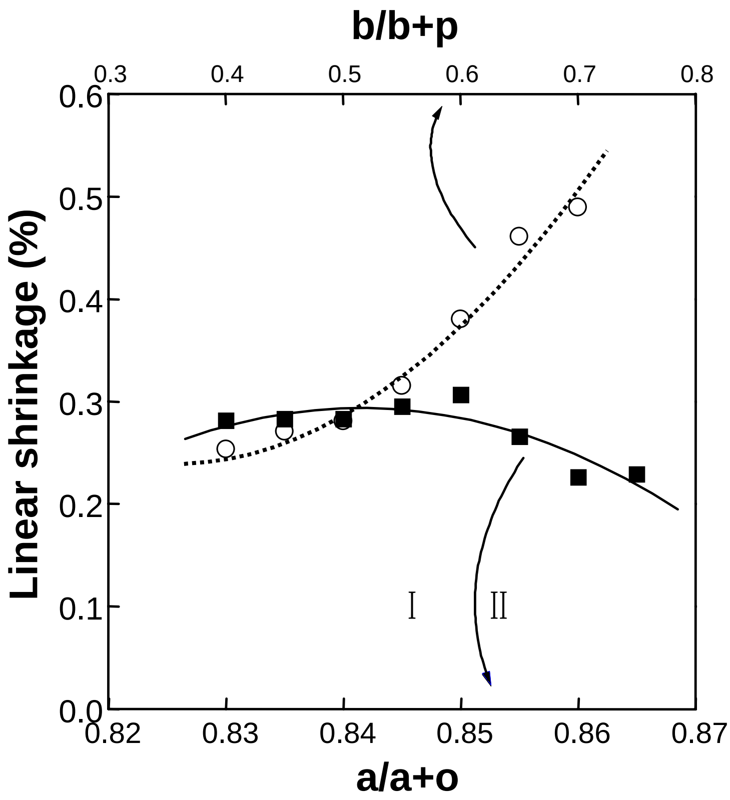


Fig. 3. Linear shrinkage of alumina tapes as a function of a/(a+o) and b/(b+p) ratios after firing (a: alumina, o: organic additives, b: binder, p: plasticizer).

a/(a+o)=0.84와 b/(b+p)=0.5로 제조된 알루미나 테이프의 수축률은 소결 시에는 0.28%였으며 유리 침투 후에는 0.01%로 합계 0.29%의 수축률을 보였다. 이 값은 In-Ceram의 0.3%와 큰 차이가 없었다 (Table III).

이상의 결과로 a/(a+o)=0.84, b/(b+p)=0.5로 결정하였다.

Table III. Percentage linear shrinkage of alumina tape and In-Ceram composites (%)

	Sintering	Glass infiltration	Total
Alumina tape	0.28	0.01	0.29
In-Ceram			0.3

3.2 최적의 조성으로 제조된 알루미나 테이프의 물성 및 반복피로 특성

3.2.1 열팽창 계수

알루미나 테이프 소결체의 열팽창 계수는 7.3×10^{-6}/℃ 이었으며 유리 침투된 알루미나 테이프 복합체는 7.5×10^{-6}/℃로 In-Ceram 복합체의 7.4×10^{-6}/℃와 비슷하였다(Table IV).

Table IV. Linear coefficients of thermal expansion of alumina tape and In-Ceram composites

	Alumina tape		In-Ceram composites
	After sintering	After glass infiltration	
25℃ - 600℃	7.3×10^{-6}/℃	7.5×10^{-6}/℃	7.4×10^{-6}/℃

3.2.2 파괴인성

알루미나 테이프 복합체의 파괴인성은 4.6 MPa·m$^{1/2}$로 In-Ceram 복합체의 5.8 MPa·m$^{1/2}$보다 조금 낮은 값을 보였으나 95% 신뢰구간에서 통계적 유의성은 없었다 (Table V).

Table V. Fracture toughness of alumina tape and In-Ceram composites

	Alumina tape composites	In-Ceram composites
Fracture toughness (MPa·m$^{1/2}$)	4.6 ± 0.05	5.8 ± 0.14

3.2.3 이축 굴곡강도(biaxial flexural strength)

유리 침투된 알루미나 테이프 복합체 시편의 굴곡강도는 498 MPa로 In-Ceram 복합체 시편의 505 MPa 보다는 조금 낮은 값을 보였으나 95% 신뢰구간에서 통계적 유의성은 없었다 (Table VI).

Table VI. Flexural strength of alumina tape and In-Ceram composites

	Alumina tape composites	In-Ceram composites
Flexural strength (MPa)	498 ± 32	505 ± 33

3.2.4 피로시험 후 굴곡 강도

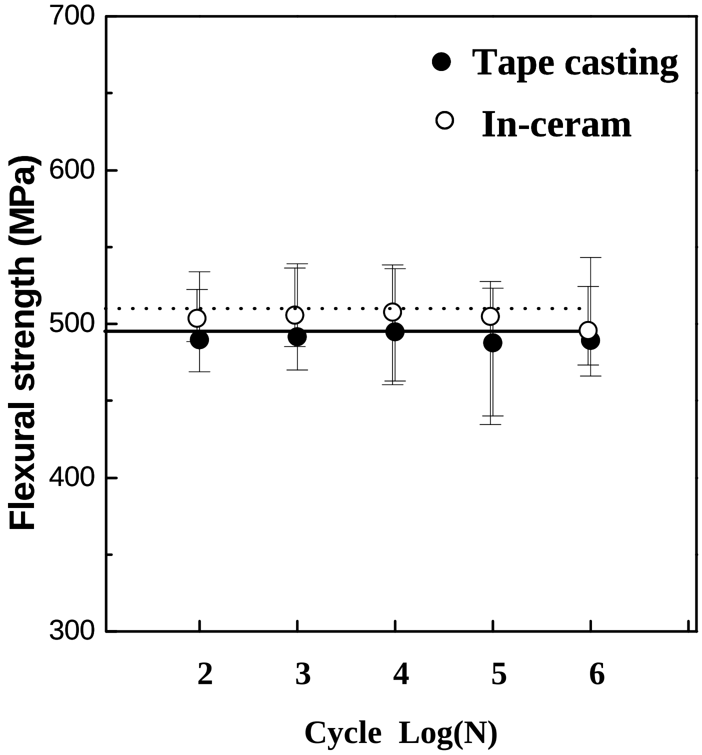


Fig. 4. Comparison of biaxial flexural strength of tape cast alumina-glass composites with that of slip cast In-Ceram composites after cyclic loading.

각 군의 시편에 10^2회에서 10^6회까지 반복 부하를 가한 후 시편을 파절시켜 이축 굴곡강도를 측정한 값을 Fig. 4와 Table VII에 나타내었다. 부하 횟수가 증가하여도 굴곡 강도 값은 크게 감소하지 않았으나 ($p>0.05$) In-Ceram의 경우 부하 횟수가 10^6이 되자 약간 감소하는 경향을 보였다.

Table VII. Flexural strength of alumina tape and In-Ceram composites after cyclic loading (MPa)

Cycle (N)	10^2	10^3	10^4	10^5	10^6
Alumina tape composites	490±26	492±29	495±31	488±35	489±34
In-Ceram composites	503±14	505±35	507±32	505±40	495±21

3.2.5 Weibull 분석

굴곡강도 값으로 Weibull 분석을 통하여 두 실험군의 Weibull modulus를 구하였다. Weibull modulus 인 m 값은 알루미나 테이프 복합체의 경우는 17.9, In-Ceram 복합체의 경우는 19.7로 나타났다 (Fig. 5, Table VII).

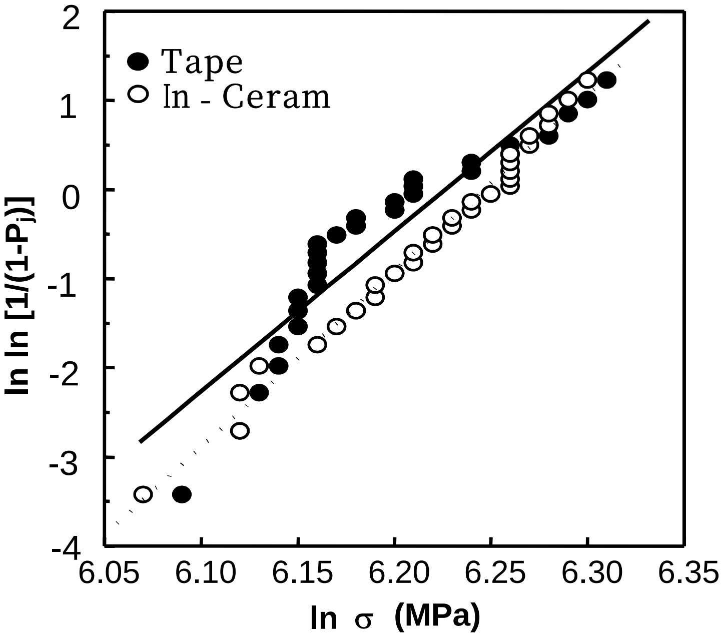


Fig. 5. Weibull plots of tape cast alumina-glass composites and In-Ceram

Table VIII. Weibull regression analysis of alumina tape and In-Ceram composites

	N	m value	$\sigma_{0.05}$(MPa)
Alumina tape composites	30	17.9	428
In-Ceram composites	30	19.7	446

m value=Weibull modulus, $\sigma_{0.05}$=stress levels at 5% probability of failure

3.2.6 파절면 및 미세구조 관찰

파절된 시편을 광학현미경 및 주사전자현미경으로 관찰하였다. 원판형 도재 시편의 대부분은 방사상의 균열이 있었다. 그리고 파괴의 시작은 힘을 받는 부위에서 시작되었다. 피로시험 후의 시편에서 파절 시 특별한 차이는 없었으며 파절 양상도 피로 시험 없이 바로 파절시킨 것과 유사하였다.

사진상에서 In-Ceram의 슬립 캐스팅의 경우는 장방형의 입자들이 균일하게 분포하고 있었으며 테이프 캐스팅의 실험 시편에서는 알루미나의 입자 크기가 작은 3-4 μm의 타원형이 많이 존재하였으며 알루미나 입자간의 거리가 In-Ceram 보다는 멀었다 (Fig. 7).

IV. 총괄 및 고찰

통상적인 금속도재관에 비해 심미성이 우수한 전부도재관에 대한 관심이 많아지면서 그 사용도 점차 늘고 있다. 그러나 전부도재관의 경우 금속에 비해 세라믹이 갖는 낮은 강도 때문에 그 사용이 제한되고 있으나 여러 가지 재료 및 방법의 개발로 강도가 높은 재료가 소개되어 적용 범위가 넓어지고 있으며 제작 과정도 점차 간소화 되고있다. 그 중에 하나로 알루미나 테이프를 사용한 전부도재관이 소개되었다[15, 25, 28].

실험에 응용된 테이프 캐스팅 방법은 주로 전자산업에서 얇고 평평한 세라믹 기판을 제조하는데 일반적으로 이용되어 왔다. 이 공정에서는 세라믹스 분말, 용매, 분산제, 결합제 및 가소제로 구성된 슬러리를 일정한 높이를 유지하도록 조절된 블레이드와 이동하는 필름 사이로 연속적으로 공급하여 테이프를 제조한다. 테이프 캐스팅에서는 재현성 있는 우수한 성질의 테이프를 제조할 수 있는 장점으로 인하여 Ketone 이나 Toluene 등을 용매로 사용하는 비수계 공정을 일반적으로 사용하여 왔다. 그러나 비수계 공정에 의한 테이프 캐스팅 법은 휘발성이 강한 유독성 유기용매의 사용으로 폭발의 위험, 환경오염 등의 문제점을 가지고 있다. 근래에 들어 환경 친화적인 수계 공정으로의 대체가 요구되어 여러 재료의 수계 테이프 캐스팅 공정에 대한 연구가 활발히 진행되고 있으나 느린 건조 속도, 수소결합에 의한 분말 응집, 그리고 수계 결합제의 낮은 강도 및 그에 따라 요구되는 결합제 함량 증가 등의 문제점을 수반하고 있다. 본 연구에서는 이런 수계 공정으로 제조된 테이프 알루미나 유리 복합체의 물리적 특성을 검사하여 임상적용 가능성을 검증하였다.

먼저 알루미나 테이프의 제조 조성에서 세라믹 테이프의 물성평가는 알루미나/(알루미나+유기물)의 무게비 즉 a/(a+o) 그리고 유기물을 구성하는 결합제/(결합제+가소제)의 무게비 즉 b/(b+p)에 의하여 테이프 형성의 유무, 접착성, 180°로 접었을 때의 터짐성 등의 항목을 종합하여 평가한 결과, a/(a+o)=0.840와 b/(b+p)=0.5에서 치관 제조용으로 가장 우수한 특성의 세라믹 테이프를 얻을 수 있었다 (Table II). 이 부근 전후의 조성에서도 세라믹 테이프의 제조는 가능하였으나 석고와의 압착에 필요한 접착성이 부족하여 아크릴계 결합제의 최적 조성은 a/(a+o)=0.84와

b/(b+p)=0.5로 결정하였다.

Fig. 2에서 볼 수 있듯이 b/(b+p) 값을 0.5로 고정하였을 때 a/(a+o)의 변화에 따른, 그리고 a/(a+o)가 0.840으로 고정되었을 때 b/(b+p)의 변화에 따른 세라믹 테이프의 인장강도를 보면 a/(a+o) 값의 변화보다는 b/(b+p)의 변화에 따른 인장강도의 차이가 더 크게 나타났음을 알 수 있다. 이는 입자사이의 거리에 따른 인장강도의 변화(a/(a+o)) 보다는 결합제 양의 변화(b/(b+p))가 인장강도에 더 큰 영향을 미치는 것으로 설명할 수 있다. a/(a+o)가 0.830 일 때 가장 낮은 인장강도 값을 나타내었는데 유기물양은 증가하였으나 세라믹 테이프 내의 알루미나 양이 부족하여 green body의 충진율이 낮아 인장강도가 저하되는 것으로 설명되어진다. 0.835에서 0.860 사이의 구간에서는 비교적 일정한 인장강도 값을 보이고 있는데 이는 입자간 거리 즉 알루미나의 양과 유기물 양과의 관계가 서로 상호보완 되면서 나타나는 것이고 알루미나 양이 가장 많은 0.865에 이르면 알루미나의 양은 많으나 유기물 양의 감소로 인장강도 값이 약간의 감소를 나타내는 것으로 보인다. 결합제는 그 양이 증가함에 따라 인장강도 값이 크게 증가함을 볼 수 있고 따라서 인장강도에 가장 큰 영향을 미친다는 것을 알 수 있다.

Fig. 3은 b/(b+p) 값을 0.5로 고정하였을 때 a/(a+o)의 변화에 따른, 그리고 a/(a+o)가 0.840으로 고정되었을 때 b/(b+p)의 변화에 따른 세라믹 테이프의 소결수축의 결과이다. 이 결과 역시 인장강도 결과와 유사하게 알루미나 양에 따른 변화보다는 결합제의 양에 따른 변화의 차이가 훨씬 더 크게 나타나고 있다. 이는 다른 수계용 결합제와는 다르게 사용한 아크릴계 결합제가 입자에 더 두꺼운 층을 형성하여 입자 표면과 입자간 공극에 고르게 분포되지 못하고 입자간의 거리를 더욱 더 증가시켜 소결시 수축을 증가시키는 것으로 유기물 양의 증가와 같은 효과를 나타내는 것으로 생각된다. Fig. 3의 I 영역에서는 입자 사이를 채우는 유기물의 양이 충분하여 입자 사이의 거리가 일정 간격을 유지하면서 거의 일정한 수준의 수축률을 보이다가 알루미나 양의 증가로 거리가 가까워지면서 즉, II 영역에서부터 수축율의 급격한 감소 추세를 보이게 되며 계속해서 입자 사이의 거리가 충분히 가까워 더 이상 입자간의 거리가 감소하지 못하면 유기물 양에 상관없이 수축이 일정하게 되는 영역이 나타나는 것으로 보인다.

다음으로 최종적으로 결정된 조성의 알루미나 테이프 수축률은 0.29%로 대부분

의 수축은 소결시에 나타났으며 In-Ceram의 경우와 차이가 없었다. 수축률은 가공의치 제작시 수복물의 적합성에 영향을 줄 수 있는 부분으로 우수한 적합도를 유지하기 위해서는 제작과정 중에 다른 부분에서 보상해주어야 하는 부분이다. In-Ceram 특수 석고의 팽창은 0.3% 정도로 소결 수축을 보상할 수 있다.

열팽창계수는 알루미나 테이프 소결체의 경우는 7.3×10^{-6}/℃였으며 유리 침투 후의 복합체는 7.5×10^{-6}/℃로 In-Ceram 복합체의 7.4×10^{-6}/℃과 비슷하다. 유리의 열팽창계수는 7.10×10^{-6}/℃ 그리고 dentin 도재는 7.2×10^{-6}/℃으로 큰 차이가 없었다. Wolf 등은 알루미나와 유리의 열팽창계수 차이가 $0.4 \sim 1.9 \times 10^{-6}$/℃ 정도에서는 강도에 미치는 영향이 적다고 보고하였다37). 이것은 고정성 가공의치를 제작할 경우에 사용할 유리 및 veneering 도재와 혼용 가능함을 나타낸다. 또 이런 열팽창계수의 차이는 유리 침투 과정에서 강도에도 영향을 주게 된다. 유리와 알루미나의 열팽창계수의 차이는 알루미나 입자에 응력을 발생시켜 강도에 영향을 미친다37, 38). 또 열팽창계수의 차이를 부여해 유리의 열팽창계수를 낮추어주면 냉각 시 유리에 압축응력이 발생하게 되고 균열은 알루미나 입자에 의해 굴절되어 파절의 진행이 방해를 받게 되어 강도는 증가한다고 하였다39-41). 또 1997년 황과 이는 무가압 분말 충전법으로 성형한 알루미나를 $2.5 \sim 3.49 \times 10^{-6}$/℃ 정도로 열팽창 계수가 서로 다른 수종의 이트리아를 함유한 붕규산염 유리로 복합체를 만들어 여러 가지 물리적 특성을 조사한 결과 알루미나 입자와 유리의 열팽창 계수의 불일치는 알루미나 입자와 유리의 결합력을 증진시키는 요소로 작용하며, 성형법과 기공율은 도재의 강도에 큰 영향을 미치지 않았다고 보고하였으며, 알루미나 입자와 유리의 열팽창 계수의 불일치가 가장 컸던 군의 물리적 성질이 가장 우수하였다고 보고하였다42). 황과 이의 실험에서 알루미나의 충진률은 50%였으며 본 실험의 알루미나 테이프의 충진률도 58%로 유사한 값을 보인다. In-Ceram의 78% 보다는 낮으나 황의 실험에서 강도 값이 In-Ceram과 유사한 값을 보이는 군이 있었으므로 충진률이 58%인 알루미나 테이프에서도 강도를 더 증가시키기 위한 방법의 하나로 유리의 성분 조절을 통한 열팽창계수 차이를 부여하는 부분의 연구가 더 필요할 것으로 고려되어진다.

파괴인성은 파괴가 일어나기 쉬운 물질의 변형 흡수성을 나타내는 지표로서 파괴가 일어나기 전 파괴 결함 전단에서의 응력 집중 정도를 나타낸다43). 알루미

나 테이프 복합체의 경우 4.6 MPa · $m^{1/2}$로 In-Ceram 복합체의 5.9 MPa · $m^{1/2}$ 보다는 낮은 값을 보였다. 이는 알루미나 테이프 복합체에 의한 전도재의 파괴에 필요한 응력이 In-Ceram에 비해 낮다는 것이다. 알루미나 테이프가 유사한 구조를 가지는 In-Ceram 보다 낮은 값을 보이는 이유로는 알루미나 충진률의 차이에 기인한 것으로 보여진다.

알루미나 테이프 복합체의 이축 굴곡강도 값은 498 MPa로 나타났으며 In-Ceram 복합체의 경우는 505 MPa로 측정되었다. 이 값은 이전에 비수계 테이프로 제작된 알루미나-유리 복합체의 강도값인 498 MPa과25, 44) 차이가 없었으며 수계 테이프에서도 비수계 테이프와 같이 높은 파절강도 값을 보였다.

일반적으로 알루미나-유리 복합체에서 강도 값은 알루미나 충진률의 차이에 영향을 받는 것으로 설명한다. 본 실험에서 알루미나 충진률을 많이 올릴 경우 테이프의 조작성 등에 영향을 미치므로 In-Ceram 정도로 올리는 데는 한계가 있었다. 상대적으로 낮은 충진률에도 불구하고 알루미나 테이프의 굴곡강도 값은 다른 여러 전부도재관용 시스템 보다 큰 값을 보였다. 즉 90-124 MPa의 Dycor system45), 160-180 MPa의 Empress System6), 그리고 350 MPa로 보고되고있는 Empress 2 시스템11-13, 46) 보다는 높은 굴곡강도 값을 가지며 300 MPa 이상으로 전치부의 가공의치에도 사용이 가능함을 보였다38).

알루미나-유리 복합체의 강도 변화는 알루미나의 상대 밀도로 설명할 수 있는데 알루미나 소결체 입자 사이의 공극으로 삼투압에 의하여 용융된 유리가 침투되어 알루미나-유리 복합체를 형성할 때 복합체의 강도는 알루미나 입자간 거리에 반비례하기 때문이다26, 27). 즉, 소결체 밀도가 높으면 알루미나 입자간 거리가 짧아 강도가 증가하며 밀도가 낮으면 입자간 거리가 길어 강도가 떨어진다. 이러한 이유로 소결체의 상대밀도와 유리 복합체의 강도 사이에는 밀접한 관계가 나타나는 것이며 알루미나의 충진률에 따라서도 강도값의 차이를 보이게 된다. 그러므로 임상에서 구치부 단일치 및 고정성 가공의치에도 적용시킬 수 있도록 더 높은 안정적인 강도값을 위해서는 충진률을 높이기 위한 공정의 개발 및 유리와의 열팽창계수 조절 부분에 대한 더 많은 연구가 필요할 것으로 생각된다.

Köber 와 Ludwig은 전치부에서 최대 교합력은 98-360 N이지만 실제로는 10-35 N의 적은 생리적인 힘이 정상적인 경우에 나타난다고 하였다47). 그럼에도 불구하

고 임상에서 수복물의 실패가 흔히 일어나므로 어떤 재료의 사용에 있어서 임상적 적용은 중요하다.

사람의 구강 내는 여러 가지 상황과 조건들이 내재되어 복합적으로 작용한다. 저작은 반복되는 부하로 반복피로 양상과 유사하며 구강내의 타액은 수분과 같이 세라믹에 영향을 미칠 수 있는 외부 요인으로 작용할 수 있으며 또한 심한 온도 변화에 노출되어 있다. 또 치근막이 존재하여 치아가 부하를 받으면 수직 및 수평으로 변이가 되므로 충격흡수 부분도 존재한다. 실험실에서 이런 모든 조건을 정확히 재현해주기란 그리 쉽지 않다. 그러나 실험실의 연구가 이런 임상에서의 모든 상황을 반영하지는 못하지만 새로운 치과 재료의 생체 적용 가능여부를 판가름하는데 매우 유용한 도움을 줄 수 있다

구강 내 사용되는 대부분의 재료는 반복되는 저작력이나 온도변화 타액과 같은 여러 가지 불리한 상황에 노출되어 있다. 그 중 반복되는 저작력으로 재료에 피로가 축적되어 나중에 파절로 이어질 수 있다. 이러한 양상은 재료의 구강 내에서의 수명과도 연관이 있으나 아직 이러한 부분에 대한 연구는 많지 않은 상태이다.

피로 시험에는 반복피로(cyclic), 동적피로(dynamic), 정적피로(static)의 세가지가 있다. 이것은 실험 시편이나 힘의 적용에 따라 분류된다. 반복 피로는 최대값과 최소값에서의 압축 및 인장응력이 반복되는 것이고 동적 피로는 시편이 파절될 때 까지 선적으로 힘을 증가시키는 것이며, 정적 피로에서는 항상 일정한 힘을 적용시킨다. 각각의 특징 및 실험상의 장단점이 있으나 반복피로가 구강 내 상황과 비슷하다.

Nyquist와 Ahlgren는 strain gauge를 구강 내에 위치시키고 여러 가지 음식물을 씹게 한 후 시간에 대한 힘의 그래프를 그린 결과 그래프 모양은 사인 곡선의 위쪽 반과 비슷함을 보고하였다[48, 49]. 저작시 힘의 크기는 1-40 lb (9-180 N)의 범위이고 force duration은 0.25-0.33 초로 저작 양상은 haversine 곡선과 비슷하다고 하였다[50].

그러므로 구강 내 모든 상황을 재현하기는 어렵지만 먼저 저작운동에서 올 수 있는 반복되는 기계적 부하에 대한 재료의 피로를 알아보고자 시편에 haversine 형태의 반복 부하를 가한 후 굴곡 강도를 측정하여 그 감소량을 보았다. 가하는 부

하는 전치부 고정성 가공의치로 적용 가능한 300 MPa을[38)] 기준하여 시편에 300 MPa의 힘이 가도록 9 kg의 하중을 반복적으로 가하였다. 그리고 반복 부하는 약 5년간의 전치부 저작 횟수에 비슷한 1250000회[51)]를 기준으로 10^6 회까지 하였다. 실험 결과 시편의 파절은 없었으며 굴곡 강도 값은 알루미나 테이프와 In-Ceram 모두 별다른 감소를 보이지 않았으나 In-Ceram의 경우 10^6 cycle에서 약간의 강도저하가 관찰되었다. 이는 Fig. 7에서 보인 바와 같이 In-Ceram의 장방형 알루미나 입자형상에 기인하는 것으로 장방형 보다 구형이 stress의 집중에 유리할 것으로 생각되나 이를 확인하기 위해서는 10^6 보다 높은 cycle에서의 추가 실험이 요구된다. Fig. 4에서 cycle 횟수에 따른 강도의 변화가 없음은 9 kg의 하중이 시편내 결함의 성장을 위한 응력에 미치지 못하기 때문이다.

치과용 도재의 강도 측정은 논문들의 발표 결과들도 매우 다양하고 실험 자료의 정확성을 기하기가 어렵다. 이러한 이유로는 geometry, 온도, loading rate, 기술적 차이를 들 수 있다[52)]. 이런 오차에 대한 다른 해석으로 통계적 기법을 이용한 Weibull regression 분석법이 세라믹의 강도학에 응용되고 있다.

Weibull 이론이 취성파괴 재료의 강도분포를 가장 적절히 설명하는 것이라고 말하고 있다[53, 54)]. Weibull 공식에서 얻어지는 m은 강도분포의 높고 좁음을 나타낼 수 있는 Weibull 계수로서 응력에 따르는 파괴확률 분포 곡선의 형태를 결정해주는 수치이다. 즉 어떤 재료가 높은 m값을 나타내었다면 그 재료는 비교적 균일한 결함의 크기, 분포 및 모양을 가지고 있어서 강도의 분포가 좁고 신뢰도가 상당히 높다는 뜻이다. 세라믹의 경우는 3-22 정도로 금속의 20-40과 비교하면 매우 낮은 편이다. 또 강도실험을 할 때 시험 방법이 달라지면 평균 강도 값은 변할 수 있지만 m값은 달라지지 않고 일정하다는 특성을 갖는다. 그러므로 세라믹과 같이 취성재료의 강도 분포에 Weibull 분석이 이용되어지고 있다.

이번 실험에서는 m 값이 두 군에서 큰 차이를 보이지 않았으며 비교적 큰 값을 보였다. 그리고 m 값이 높다는 것은 비교적 균일한 결함의 크기, 분포 및 모양을 가지고 있어 강도의 분포대가 좁고 재료의 신뢰도가 높음을 의미한다. 이전의 연구에서 Zeng 등은 Weibull modulou인 m 값이 IPS Empress가 5, In-Ceram이 10, Procera가 6으로 보고하였다[55)]. 기존의 도재들 중에서 In-Ceram이 비교적 높은 신뢰도를 보여주고 있다.

실험시편의 전자주사사현미경으로 미세구조를 관찰한 결과 In-Ceram 복합체는 장방형의 큰 구조였으며 알루미나 테이프로 제작된 복합체는 3-4 μm의 타원형의 구조를 보였으며 알루미나 입자간의 간격이 더 큰 양상을 보였다. 테이프 캐스팅의 경우 알루미나 충진률은 58%로 In-Ceram의 78% 보다 낮은 값을 보이는데 사진에서도 이 충진률의 차이를 반영하듯 알루미나 입자간의 간격이 알루미나 테이프 복합체에서 크게 나타났다. 두 재료의 파괴인성과 Weibull modulus 차이는 이러한 미세구조의 상이성에 기인한 것으로 사료된다. 그러나 두 군 모두 균일한 결정상을 보였으며 결함이 적은 것도 높은 강도를 보임을 설명해준다.

도재가 내부의 결함을 가지고 있거나 제작과정 중에 결함이 생기면 이것으로 인해 쉽게 파절이 올 수 있다. 취성 파괴 재료의 강도 향상을 위해서는 응력의 집중점이 되는 각종 결함을 근본적으로 없애거나, 그 크기를 줄이거나 아니면 그 결함이 균열로 진행되는 것을 막는 방법이 마련되어야 한다. 결함으로는 균열(crack), 기공, 제2상(secondary phase), 과다 성장된 결정, 결정립(grain), 포함물(inclusion) 등이 있다.

그 중에서 실제 임상에서 교합조정 등에 의해 발생될 수 있는 결함으로는 균열로 수십 내지 수백 μm의 작은 표면 균열은 시적 시 내면 조정이나 교합조정과 같은 기계적 가공이나 연마를 할 때 생긴다. 또 사용 중에 경도가 높은 다른 입자나 물체에 부딪히게 되면 역시 이와 같은 작은 표면 균열이 생기게 된다. 이런 균열들은 세라믹 재료의 표면에 가장 흔히 나타나는 파괴의 원점이 된다. 이전의 연구에서도 도재의 강도는 표면 결함의 수와 크기 그리고 모양 등에 의해서 영향을 받으며 100 μm 정도의 결함이 가장 큰 영향을 미치는 것으로 보고되었다56). 그리고 고정성가공의치의 경우 응력은 연결부에 집중된다. 그러므로 제작 시 연결부의 정확한 형태를 예측하여 제작하여 수복물의 응력이 집중되는 연결부를 가급적 수정하지 않도록 주의해서 제작함이 필요할 것으로 생각된다.

도재의 유리 성분 중 silicate 결합은 물에 의해 가수분해 된다고 보고된 바 있다57). 그리고 이것은 정적인 화학적 피로로 반복적인 기계적 피로에도 같이 상호 영향을 줄 수 있다고 하였다58). 알루미나-유리 복합체에도 유리 성분이 있어 수분에 의한 영향을 받을 수 있는 소지가 있다. 그러므로 구강 내에서의 타액이 복합체의 특성에 영향을 줄 수 있으므로 이에 대한 지속적인 연구가 필요할 것으로

생각된다.

V. 결론

수계 공정의 테이프 캐스팅 법으로 제조 시 첨가물의 구성비에 따른 알루미나 테이프의 조작성 및 알루미나 유리 복합체의 인장강도 및 수축률을 비교하여 첨가되는 유기물의 최적 조성을 규명하였다. 그리고 결정된 최적의 조성으로 알루미나 테이프를 제조하고 유리를 침투시켜 복합체의 여러 가지 물리적 특성 및 반복피로 후의 기계적 특성을 유사한 구조의 In-Ceram 시스템과 비교 관찰하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

1. 수계 알루미나 테이프의 조성 즉 a/(a+o) (a=알루미나 분말 무게; o=첨가 유기물 무게) 비와 b/(b+p) (b=첨가 유기물 중 결합제의 무게; p=첨가 유기물 중 가소제의 무게) 비의 변화에 따른 테이프 형성의 유무, 접착성, 180°로 접었을 때의 터짐성 등의 항목을 평가하고, 인장강도 및 수축률을 측정하여 a/(a+o)=0.840, b/(b+p)=0.5에서 치관 제조용으로 가장 우수한 특성의 세라믹 테이프를 얻을 수 있었다.
2. 최적의 조성으로 제조한 알루미나 테이프 복합체의 선수축률은 0.29%로 In-Ceram 복합체의 0.3%와 차이가 없었다.
3. 알루미나 테이프 소결체의 열팽창계수는 $7.3 \times 10^{-6}/℃$, 유리 침투 후는 $7.5 \times 10^{-6}/℃$ 로 In-Ceram 복합체의 $7.4 \times 10^{-6}/℃$와 비슷하였다.
4. 알루미나 테이프 복합체의 파괴인성은 4.6 ± 0.05 MPa·$m^{1/2}$로 In-Ceram 복합체의 5.8 ± 0.14 MPa·$m^{1/2}$ 보다 낮은 값을 보였으나 통계적 유의성은 없었다 ($p > 0.05$).
5. 알루미나 테이프 복합체의 이축 굴곡강는 498 ± 32 MPa로 측정되었으며 In-Ceram 복합체의 경우는 505 ± 33 MPa로 차이가 없었다 ($p > 0.05$).
6. 알루미나 테이프 및 In-Ceram 복합체에서 반복하중을 가한 후 이축 굴곡강도 값을 측정한 결과 파절 강도 값의 감소는 없었다 ($p>0.05$).
7. Weibull 분석에서 알루미나 테이프 복합체의 Weibull modulus 값은 17.9, In-Ceram 복합체는 19.7로 나타났다.
8. 전자주사사현미경으로 미세구조를 관찰한 결과 알루미나 테이프로 제작된 복

합체는 3-4 μm의 타원형의 구조를 보였으나 In-Ceram 복합체는 장방형의 큰 구조였으며 알루미나 입자간의 간격은 알루미나 테이프 복합체가 In-Ceram 복합체의 경우 보다 더 큰 양상을 보였다.

이상의 결과로 수계공정의 테이프 캐스팅으로 제조된 알루미나-유리 복합체는 In-Ceram 알루미나-유리 복합체와 같이 전치부 고정성 국소의치에 적용이 가능할 것으로 생각되며 반복되는 교합력이 가해지는 구강 내에서도 일정기간의 수명을 유지할 것으로 사료된다.

참고문헌

1. Campbell SD: A comparative strength study of metal ceramic and all-ceramic esthetic materials: modulus of rupture. J Prosthet Dent 1989;62(4):476-479.
2. Chiche GJ, Pinault A: Esthetics of Anterior Fixed Prosthodontics. Quintessence Publishing Co. Inc. 1994:75-79.
3. Giordano RA: Dental ceramic restorative systems. Compend Contin Educ Dent 1996;17:779-782, 784-786.
4. Scherrer S, Mojon P, Belser U, et al.: The Vita Hi-Ceram crown system : A clinical and laboratory investigation. J Dent Res 1988;[Abstract no. 812], 67:214.
5. Andersson M, Oden A: A new all-ceramic crown. A dense-sintered, high-purity alumina coping with porcelain. Acta Odontol Scand 1993;51(1):59-64.
6. Dong JK, Luthy H, Wohlwend A, et al.: Heat-pressed ceramics : Technology and strength. Int J Prosthodont 1992;5:9.
7. Dickinson AJ, Moore BK, Harris RK, et al.: A comparative study of the strength of aluminous porcelain and all- ceramic crowns. J Prosthet Dent 1989;61(3):297-304.
8. Dunn B, Levy MN, Reisbick MH: Improving the fracture resistance of dental ceramic. J Dent Res 1977;56(10):1209-1213.
9. Hondrum SO, O'Brien WJ: The strength of alumina and magnesia core crowns. Int J Prosthodont 1988;1(1):67-72.
10. Beham G: IPS-Empress : A New Ceramic Technology. Ivoclar-Viva dent Report 1990;6:1-13.
11. Holand W: Materials science fundamentals of the IPS Empress 2 glass-ceramic. Ivoclar Vivadent Report 1998;12:3-10.
12. Schweiger M, Holand W, Frank M: IPS Empress 2: A new pressable high-strength glass-ceramic for esthetic allceramic restorations. Quintessence Dent Tech 1999;22:143-151.
13. Sorensen J, Cruz M, Mito W: Research evaluations of a lithium disilicate restorative system: IPS Empress 2. Signature 1999;4:4-10.
14. Shearer B, Gough MB, Setchell DJ: Influence of marginal configuration and porcelain addition on the fit of In-ceram crowns. Biomaterials 1996;Oct.,

17(19):1891-1895.

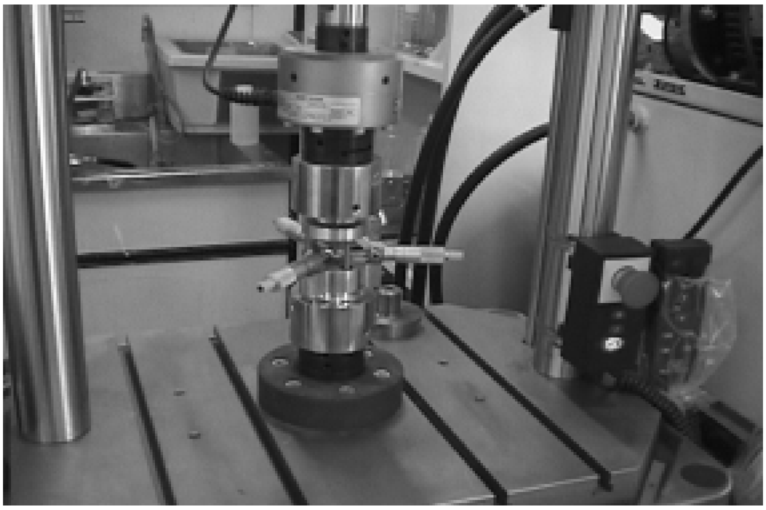
15. Oh NS, Lee KW, Lee MH, et al.: Marginal Fit of Glass Infiltrated Alumina Core Fabricated from Alumina Tapes. J Korean Acad Prosthodont 1998;36(6):832-845.
16. Grey NJ, Piddock V, Wilson MA: In vitro comparison of conventional crowns and a new all-ceramic system. Journal of Dentistry 1993;Feb. 21(1):47-51.
17. Probster L, Diehl J: Slip-casting alumina ceramics for crown and bridge restorations. Quintessence Int 1992;23(1):25-31.
18. Siervo S, Bandettini B, Siervo P, et al.: The CELAY system: a comparison of the fit of direct and indirect fabrication techniques. Int J Prosthodont 1994;7(5):434-439.
19. Radz GM: A new CAD/CAM esthetic crown system. Compend Contin Educ Dent 1998;19(6):560-562, 564-566.
20. van der Zel JM, Vlaar S, de Ruiter WJ, et al.: The CICERO system for CAD/CAM fabrication of full-ceramic crowns. J Prosthet Dent 2001;85(3):261-267.
21. LoPresti JT, David SB: New concepts in restorative dentistry. The CEREC CAD/CAM system. N Y State Dent J 1994;60(9):39-42.
22. Oden A, Andersson M, Krystek-Ondracek I, et al.: Five-year clinical evaluation of Procera AllCeram crowns. J Prosthet Dent 1998;80(4):450-456.
23. Wagner WC, Chu TM: Biaxial flexural strength and indentation fracture toughness of three new dental core ceramics. J Prosthet Dent 1996;76(2):140-144.
24. Boening KW, Wolf BH, Schmidt AE, et al.: Clinical fit of Procera AllCeram crowns. J Prosthet Dent 2000;84(4):419-424.
25. Kim DJ, Lee MH, Kim CE: Fabrication of In-Ceram core by sheet forming process. Bioceramics 1997;10:211-214.
26. Kim DJ, Lee MH, Kim CE: Mechanical Properties of Tape-Cast Alumina-Glass Dental Composites. J Am Ceram Soc 1999;82(11):3167-3172.
27. Kim DJ, Lee MH, Lee DY, et al.: A Comparison of Mechanical Properties of All-Ceramic Alumina Dental Crowns Prepared from Aqueous- and Non-Aqueous-Based Tape Casting. J Biomed Mater Res 2000;53:314-319.
28. Oh NS, Kim ES, Lee KW, et al.: A new manufacturing method of all ceramic restoration using alumina tape and presentation of clinical cases. J Korean Acad Prosthodont 2000;38(6):800-805.

29. Yoshinari M, Derand T: Fracture strength of all-ceramic crowns. Int J Prosthodont 1994;7(4):3219-3238.
30. Castellani D, Baccetti T, Giovannoni A, et al.: Resistance to fracture of metal-ceramic and all-ceramic crowns. Int J Prosthodont 1994;7:149-154.
31. Probster L: Survival rate of In-ceram restorations. Int J Prosthodont 1993;6(3):259-263.
32. Chantikul P, Anstis GR, Lawn BR, et al.: A Ceitical Evaluation of Indentation Techniques for Measuring Fracture Toughness: II, Strength Method. J Am Ceram Soc 1981;64(9):539-543.
33. Marshall DB, Noma T, Evans AG: A Simple Method for Determining Elastic-Modulous-to-Hardness Ratios using Knoop Indentation Measurements. Comm. Am. Ceram. Soc. 1982;65:C175-C176.
34. Annual book of ASTM Standards. American Society for Testing and Materials, Philadelphia, PA.;15.02 Sect 15:446-450.
35. Standard Test-Method for Biaxial Flexure Strength (Modulus of Rupture) of Ceramic Substrates. ASTM Designation 1996;F 394-78.
36. Shetty D, Rosenfield A, McGuire P, et al.: Biaxial flexure tests for ceramics. Am Ceram Soc Bull 1980;59:1193-1197.
37. Wolf WD, Vaidya KJ, Francis LF: Mechanical properties and analysis of alumina-glass dental composites. J Am Ceram Soc 1996;79:1769-1776.
38. Mclean JW, Hughes TH: The reinforcement of dental porcelain with ceramic oxides. Br Dent J 1965;119:251-267.
39. Ferro KJ, Myers ML, Graser GN: Fracture strength of full contoured ceramic crowns and porcelain-veneered crowns of ceramic copings. J Prosthet Dent 1994;71(5):462-467.
40. Mante FK, Brantley WA, Dhuru VB, et al.: Fracture toughness of high alumina core dental ceramics: the effect of water and artificial saliva. Int J Prosthodont 1993;6(6):546-552.
41. Wolf WD, Francis LF, Lin CP, et al.: Melt-infiltration processing and fracture toughness of alumina-glass dental composite. J. Am. Ceram. Soc. 1993;76:2691-2694.
42. Whang SW, Lee KW: The physcial porperties of Y2O3-containing glass infiltrated alumina core made by pressureless powder packing method. J Korean Acad Prosthodont 1997;35(1):221-243.
43. Rosenstiel SF, Porter SS: Apparent fracture toughness of metal ceramic

restorations with different manipulative variables. J Prosthet Dent 1989;61(2):185-191.

44. Lee Mh, Kim DJ, Lee DY, et al.: Mechanical properties of alumina glass dental composites prepared from aqueous based tape casting. Journal of the Korean Ceramic Society 1999;36(10):1123-1131.
45. Seghi RR, Sorensen JA, Engelman MJ, et al.: Flexural strength of new ceramic materials [abstract 1348]. J Dent Res 1990;69:299.
46. Severance G: Introducing a lithium disilicate glass-ceramic: IPS empress 2. Signature 1999;4:1-3.
47. Kober K, Ludwig K: Maximum biting force as a factor for consideration in the fabrication of dental restoration. J Dent Lab 1983;31:55-60.
48. Ahlgren J, Owall B: Muscular Activity and Chewing Force: A Plygraphic Study of Human Mandibular Movement,. Arch Oral Biol 1970;15:271.
49. Nyquist G, Owall B: Masticatory Load Registration During Function. Odont Revy 1968;19:45.
50. Jent T, Karlsson S, Hedegard B: Mandibular Movements of Young Adults Recorded by Intraorally Placed Light-Emitting Diodes. J Prosthet Dent 1979;42(6):669.
51. DeLong R, Sakaguchi RL, Douglas WH, et al.: The wear of dental amalgam in an artificial mouth: a clinical correlation. Dent Mater 1985;1(6):238-242.
52. Hondrum SO: A review of the strength properties of dental ceramics. J Prosthet Dent 1992;67:859-865.
53. Weibull W: A Statistical Theory of the Strength of Materials. Ing. Vetenskaps Akad. 1939;151:1-45.
54. Weibull W: A Statistical Distribution Function of Wide Applicability. J. of Appl. Mech 1951;18:293-297.
55. Zeng K, Oden A, Rowcliffe D: Flexure test in dental ceramics. Int J Prosdont 1996;9:434-439.
56. Kelly JR, Giordano R, Pober R, et al.: Fracture surface analysis of dental ceramics: clinically failed restorations. Int J Prosthodont 1990;3(5):430-440.
57. Michalske T, Freiman S: A molecular interpretation of stress corrosion in silica. Nature 1982;295:511-512.
58. White SN, Li ZC, Yu Z, et al.: Relationship between static chemical and cyclic mechanical fatigue in a feldspathic porcelain. Dent Mater 1997;13(2):103-110.

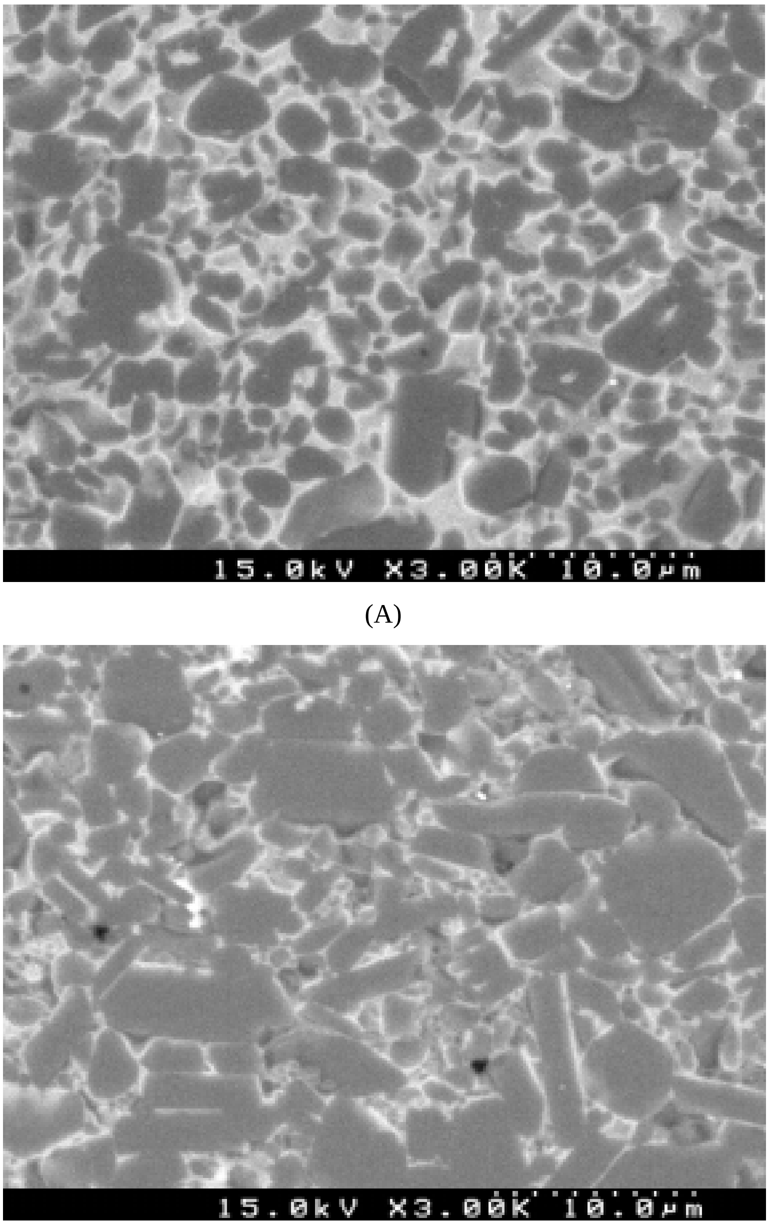
사진부도



(A)

(B)

Fig. 6. Biaxial flexure apparatus mounted on a hydraulic testing machine (A) and disk specimen placed on the biaxial flexure jig (B).



(A)

(B)

Fig. 7. SEM micrographs imaged with back-scattered electrons of polished surface of tape cast alumina-glass composite (A) and In-Ceram alumina-glass composite (B) in magnification of x 3000.

ABSTRACT

Physical Properties and Cyclic Fatigue of Glass Infiltrated Tape-Cast Alumina Cores

Nam-Sik Oh D.D.S., M.S.D.
Dept. of Dentistry, The Graduate School, Yonsei University
(Directed by Ho-Yong Lee D.D.S., M.S.D., Ph.D.)

Although all ceramic crowns are superior to traditional porcelain fused to metal crowns in aesthetics, wear resistance, and chemical inertness, quantitative data on clinical performance have not been documented extensively. It has been reported that ceramic crowns tend to fail after a few years in usage because of “fatigue” failure.

The purpose of this study was to determine an optimum composition for aqueous-based alumina tape applied for fabrication of the all ceramic crowns and to compare physical properties and fatigue behavior of tape-cast alumina-glass composites and with those of In-Ceram.

The properties, examined in this study, were tensile strength and linear shrinkage of the tapes, coefficient of thermal expansion, fracture toughness, biaxial flexural strength, and fatigue strength. The fatigue strength was determined after cyclic loading between 1 kg and 9 kg for 10^2 to 10^6 cycles at a frequency f=10 Hz, in haversinusoidal wave-form.

As the results of this study, the following conclusions were drawn:

1. The optimal tape composition for the all ceramic crown applications was alumina/(alumina+binder+plasticizer)=0.84 and binder/(binder+plasticizer)=0.5.
2. The linear shrinkage of alumina tape composites was 0.29% which was similar to 0.3% of In-Ceram composites.
3. The coefficients of thermal expansion of sintered alumina tape and the glass infiltrated tape were 7.3 x 10^{-6}/ and 7.5 x 10^{-6}/ , respectively, which was almost identical with 7.4 x 10^{-6}/ of In-Ceram composites.
4. The mean fracture toughness of the glass infiltrated alumina tape was 4.6 ± 0.05 MPa·$m^{1/2}$. Although it was a little lower compared to 5.8 ± 0.14 MPa·$m^{1/2}$ of

In-Ceram, there was no statistically significant difference ($p > 0.05$).

5. The mean biaxial flexural strength of the tape-cast alumina-glass composites and In-Ceram composites were 498 ± 32 MPa and 505 ± 33 MPa, respectively and there was no statistically significant difference ($p > 0.05$).
6. After the cyclic loading, the mean biaxial flexural strength of tape-cast alumina glass composites and In-Ceram composites were not decreased ($p > 0.05$).
7. The Weibull moduli of the alumina tape composites and In-Ceram composites were 17.9 and 19.7, respectively and there was no statistically significant difference in either group ($p > 0.05$).

In conclusion, the aqueous-based tape cast alumina-glass composite is suitable for 3-unit anterior fixed partial dentures as the In-Ceram system is.

Key words: all ceramic crown, In-Ceram, fatigue strength, tape cast alumina tape, flexural strength