

수직 진동형 Rheometer를 이용한 복합레진의 유변학적 성질의 측정

이인복 · 조병훈 · 손호현 · 이상탁 · 엄정문*

서울대학교 치과대학 보존학교실

ABSTRACT

RHEOLOGICAL CHARACTERIZATION OF COMPOSITES USING A VERTICAL OSCILLATION RHEOMETER

In-Bog Lee, Byung-Hoon Cho, Ho-Hyun Son, Sang-Tag Lee, Chung-Moon Um*

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

Objective: The purpose of this study was to investigate the viscoelastic properties related to handling characteristics of composite resins.

Methods: A custom designed vertical oscillation rheometer (VOR) was used for rheological measurements of composites. The VOR consists of three parts: (1) a measuring unit, (2) a deformation induction unit and (3) a force detecting unit. Two medium viscous composites, Z100 and Z250 and two packable composites, P60 and SureFil were tested. The viscoelastic material function, including complex modulus E^* and phase angle δ , were measured. A dynamic oscillatory test was used to evaluate the storage modulus (E'), loss modulus (E'') and loss tangent ($\tan\delta$) of the composites as a function of frequency (ω) from 0.1 to 20 Hz at 23°C.

Results: The E' and E'' increased with increasing frequency and showed differences in magnitude between brands. The E^* s of composites at $\omega = 2$ Hz, normalized to that of Z100, were 2.16 (Z250), 4.80 (P60) and 25.21 (SureFil). The magnitudes and patterns of the change of $\tan\delta$ of composites with increasing frequency were significantly different between brands. The relationships between the complex modulus E^* , the phase angle δ and the frequency ω were represented by frequency domain phasor form, $E^*(\omega) = E^*e^{j\delta} = E^*\angle\delta$.

Conclusions: The viscoelasticity of composites that influences handling characteristics is significant different between brands. The VOR is a relatively simple device for dynamic, mechanical analysis of high viscous dental composites. The locus of frequency domain phasor plots in a complex plane is a valuable method of representing the viscoelastic properties of composites. [J Kor Acad Cons Dent 29(6):489-497, 2004]

Key words : VOR, Viscoelasticity, Composite, Complex modulus, Frequency domain phasor plot

* Corresponding author: Chung-Moon Um

Department of Conservative Dentistry,
College of Dentistry, Seoul National University
28 Yoengun-dong, Chongro-gu, Seoul, Korea, 110-749
Tel : 82-2-2072-3953, 2651 Fax : 82-2-2072-3859
E-mail : inboglee@snu.ac.kr

I. 서 론

복합레진이 치아 수복에 도입된 후 초기에는 낮은 기계적 물성, 높은 마모율, 중합 수축 등의 문제로 주로 전치부의 심미 수복에 사용되어 왔다. 요즘 출시되는 복합레진은 단량체 및 무기질 filler의 개선과 blending 기술의 발전으

※ 이 논문은 보건복지부 중점연구과제 (과제번호 03-PJ1-PG1-CH09-0001)의 지원에 의해 이루어졌음.

로 마모저항성이 아말감에 거의 근접할 정도로 물성이 크게 향상되었고 범랑질과 상아질에 대한 접착 술식의 발달로 수복물의 유지력 또한 크게 개선되어 매우 큰 와동을 제외하고는 이제 복합레진 수복물의 마모 및 파절, 변연누출 및 수복물의 탈락에 대한 우려는 크게 감소하였다¹⁾.

최근에 와서는 아말감의 수는 독성에 대한 염려와 구치부 수복 시 심미적 요구의 증가, 그리고 복합레진 자체의 기계적 물성 및 마모도의 개선 등으로 점차 구치부 수복에 복합레진을 사용하는 빈도가 크게 늘고 있다. 복합레진 수복의 빈도가 증가함에 따라 임상가들은 복합레진의 시술 시 조작성에 더욱 큰 관심을 가지게 되었다. 1, 2급 와동에서 복합레진을 이용 수복 시 임상가가 부담하는 문제는 주로 긴 밀한 인접면 형태의 회복과 빠른 시간에 교합면 형태를 완성하고 마무리와 연마 시 소요되는 시간을 줄이는 것이 큰 관건이다. 복합레진의 조작성은 진료의 편의성과 진료시간, 수복물의 결과에 큰 영향을 미친다^{2,6)}. 이러한 임상적 요구에 따라 복합레진 제조회사들은 보다 향상된 조작성을 위해 여러 점도의 복합레진을 제공하고 있다. 구치부 수복을 위해 개발된 고점도 복합레진은 점도가 크게 증가되어 끈적이지 않아 아말감처럼 와동에 다져 넣을 수 있어 'Packable Composite' 라 불린다. 따라서 최근 수복용 복합레진의 개발 추세는 과거와 달리 단지 중합 후 나타나는 물성의 향상 추구에서 전일보하여 술자가 임상에서 더 사용하기 쉽고 균일한 임상적 결과를 얻을 수 있는 조작성의 향상에 많은 노력이 기울여지고 있다.

기존에 나와 있는 hybrid 복합레진들도 제조회사나 상품명에 따라 점도가 크게 다른 것으로 알려져 있다. 제품마다 점도가 다르므로 술자는 그에 적합한 적절한 수복 방법을 사용해야 한다. 즉 점도가 높은 경우는 "적용 후 가압하기 (apply and press)", 점도가 낮은 경우는 "적용 후 끌기 (apply and drag)" 와 같은 방법에 의해 적절한 해부학적 형태를 형성해야 하며 이는 술자의 경험에 어느 정도 의존한다^{7,8)}.

최근 수 년 동안 조작을 용이하게 하기 위해 새로 등장한 복합레진 수복재료의 다양화는 점도에 기초한 새로운 복합레진의 분류체계가 필요함을 말해준다. 즉 macrofill, minifil, microfil 그리고 hybrid 복합레진과 같이 filler의 크기에 기반을 둔 분류⁹⁾가 아닌 flowable, 저점도, 중점도, 고점도 hybrid 및 packable 복합레진과 같이 점도에 기반을 둔 분류체계가 유용하다¹⁻⁵⁾. 따라서 조작성에 가장 큰 영향을 미치는 각 재료별 점도와 그와 관련이 있는 재료의 물성의 측정은 1차적으로 시행되어야 할 과제이고 이는 임상가에게 직접적으로 도움을 줄 수 있는 유용한 정보가 될 수 있다.

Opdam 등⁵⁾과 Tyas 등⁷⁾은 수중 구치수복용 복합레진의 상대적 점조도를 각각 평판가압법과 penetrating 방법으로

측정하여 비교하였고 Bayne 등²⁾은 역시 평판가압법을 이용하여 유동성 복합레진과 전, 구치용 hybrid 복합레진을 비교하여 유동성 복합레진 사이에도 많은 점도의 차이가 있음을 보고하였다. 그러나 이들 연구는 복합레진 사이의 단순한 상대적인 점도의 비교일 뿐 재료 자체 고유의 특성에 관한 정보는 전혀 제공하지 못한다.

특정 재료의 점도는 여러 가지 방법으로 측정될 수 있고 측정대상 물질의 성상과 점도의 크기의 수준에 따라 측정방법이 결정되며 측정도구에 따라 얻을 수 있는 정보의 질과 양도 다양하다. 일반적으로 치과용 복합레진과 같은 호세 형태의 고분자 재료는 점성과 탄성을 동시에 지니는 점탄성 재료이다¹⁰⁻¹⁵⁾. 즉 금속(고체)과 같은 탄성체와 물이나 기름(액체)과 같은 점성체의 중간영역에 위치한다. 따라서 어떤 재료의 점성과 탄성의 절대값과 상대적 비율은 그 물질이 외력에 대해 반응하는 특성을 결정짓는 중요한 재료함수이다¹⁶⁻¹⁸⁾.

점탄성의 측정방법에는 크리프테스트 (creep test), 응력 완화실험 (stress relaxation test), 일정 변형속도실험 (constant strain rate test) 그리고 동적실험 (dynamic test) 등이 있으며 이중 고분자의 선형 점탄성 성질을 결정하는데는 동적회전전단실험 (dynamic oscillatory shear test)이 가장 많이 사용된다¹⁶⁻¹⁹⁾. Lee 등¹⁹⁾은 동적회전전단실험을 이용하여 flowable, universal hybrid, 그리고 packable 복합레진 사이에는 많은 점탄성의 차이가 있음을 보고하였고 같은 종류의 복합레진이라 할 지라도 제품에 따라 점성과 탄성의 크기 및 비율이 다르며 진동 주파수가 증가함에 따라 점도가 감소하는 pseudoplastic 한 성질을 보임을 밝혔다.

회전점도계 (rotational rheometer)를 사용한 동적회전전단실험은 주로 전단성 흐름이 중요한 압출 제조공정이나 flowable 레진과 같이 점도가 낮아 주사기를 이용하여 와동에 주입 후 drag와 flow를 이용하는 재료의 유변학적 특성의 연구에는 적당하다. 그러나 중간 점도의 universal hybrid 복합레진이나 고점도의 packable 복합레진은 주로 hollen back 기구나 plugger를 이용하여 적용 후 가압하는 방식으로 수복물의 형태를 조각한다. 이 경우 회전 점도계를 이용 전단변형을 가하여 점탄성을 측정하는 것은 실제 임상에서 술자가 이들 중점도 혹은 고점도의 복합레진을 packing 할 때 경험하는 점탄성과는 분명한 차이가 있다. 즉 일반적인 회전형 점도계에서는 회전 또는 진동하는 전단변형에 대한 저항성을 측정하나 실제 임상에서 복합레진 충전 시 일어나는 주된 변형의 형태는 압축과 신장 (compression and stretching) 이다. 따라서 임상에서 복합레진을 적용하는 상황을 재현하기 위해서는 수직으로 복합레진을 압축 신장시키며 점탄성을 측정할 수 있는 장치가 필요하다.

본 연구는 고가의 회전형 점도계를 사용하지 않고 복합레

진의 조작성과 큰 관련이 있는 점탄성을 측정하기 위해 실제 임상 상황을 재현할 수 있는 수직 진동형 점도계 (vertical oscillation rheometer, VOR)를 고안, 제작하여 중간 점도의 hybrid 복합레진과 고점도의 packable 복합레진의 점탄성을 측정 비교하였다. 본 기기를 사용하여 측정한 결과와 회전형 점도계를 사용, 전단 변형을 가하여 측정된 점탄성 결과를 비교하여 본 장치의 유용성을 평가 하였다.

II. 실험 재료 및 방법

1. 기기의 구성요소와 동작원리 (Instrumentation)

복합레진이 압축 신장시의 유변학적 특성을 측정하기 위해 특별히 설계된 수직 진동형 레오미터 (vertical oscillation rheometer, VOR)를 제작하였다^{20,21)}. 이 VOR 은 (1) 측정 유니트, (2) 파형발생기 (function generator MXG-9802A, Metex instrument, Seoul, Korea), 서보 파워앰프 그리고 스피커를 사용한 actuator, (3) 로드셀 (BC-120M, CAS, Seoul, Korea)과 오실로스코프 (TDS 220, Tektronics, Oregon, USA)로 이루어진 힘 감지 유니트로 구성되어 있다 (Figure 1-a).

기기의 동작 원리는 다음과 같다. 함수발생기에 의해 만들어진 0.1~20 Hz의 사인파형 진동 전압 신호가 서보파워앰프로 입력된다. 서보앰프에 의해 증폭된 신호는 최대 출력 200 W 스피커에 입력되어 진동변위를 만들어 낸다. 이 진동변위는 지름 5 mm의 acrylic rod로 만들어진 측정 유니트의 입력부로 전달된다. 동시에 진동의 진폭, 즉 변위량은 변위센서인 LVDT (차동가변변압기, linear variable differential transformer, LVDT probe AT-1, Solartron Metrology, West Sussex, UK)로 즉각적으로 측정된다. 측정된 신호는 서보앰프로 되먹임되어 함수발생기에서 입

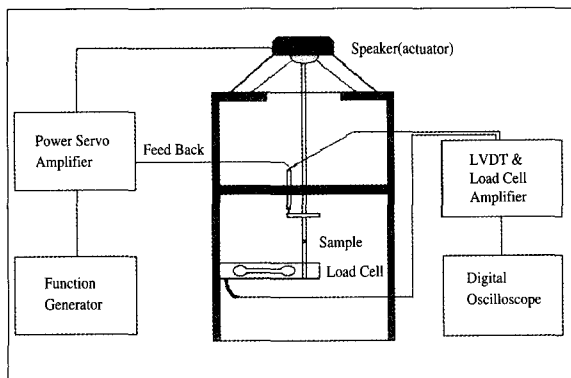


Figure 1-a. Diagram of the VOR (vertical oscillatory rheometer)

력된 신호와 비교, 항상 일정한 변위가 유지되도록 파워앰프의 출력이 조절된다. 또한 이 LVDT 출력신호는 변위의 측정값으로 사용된다. 측정 유니트의 상위 acrylic rod와 하위 rod 사이에는 1 mm의 틈이 존재하여 여기에 composite 샘플이 놓여진다 (Figure 1-b). 측정 유니트의 상위 rod가 진동함에 따라 composite를 통하여 하위 rod로 진동이 전달되며 composite의 점탄성 차이에 따른 응답 특성이 힘의 형태로 하위 acrylic rod에 연결되어 있는 120 gmf 용량의 load cell로 측정된다. LVDT로 측정된 변위량 입력신호와 Load cell로 측정된 힘, 즉 출력신호는 증폭과 잡음 제거 등의 신호처리 과정을 거친 후 oscilloscope로 입력되어 분석된다.

2. 이론적 배경

재료의 점탄성을 측정하기 위해서는 재료에 사인과 형태의 변형을 주어 나타나는 응력을 측정한다. 이상적 탄성체인 경우 응력과 변형은 위상차가 없다 (*in phase*, and the phase shift $\delta = 0$). 이상적 점성체는 응력과 변형 사이에 90° 의 위상차가 존재한다 (90° *out of phase*, $\delta = 90^\circ$). 대부분의 재료는 점성과 탄성을 모두 지닌 점탄성체이다. 어떤 재료에 주파수 ω , 진폭 ϵ_0 인 진동 변위를 가하면 변형과 응력 사이의 관계는 다음과 같다.

$$\text{변형 } \epsilon(t) = \epsilon_0 \sin \omega t$$

$$\text{응력 } \sigma(t) = \sigma_0 \sin(\omega t + \delta).$$

여기서 δ 는 응력과 변형 사이의 위상각 또는 위상지연이다 (Figure 2). 이 식들로부터 두 계수를 정의 할 수 있는 바,

$$E' = \frac{\sigma_0}{\epsilon_0} \cos \delta = E_0 \cos \delta \quad \text{과}$$

$$E'' = \frac{\sigma_0}{\epsilon_0} \sin \delta = E_0 \sin \delta \quad \text{로서}$$

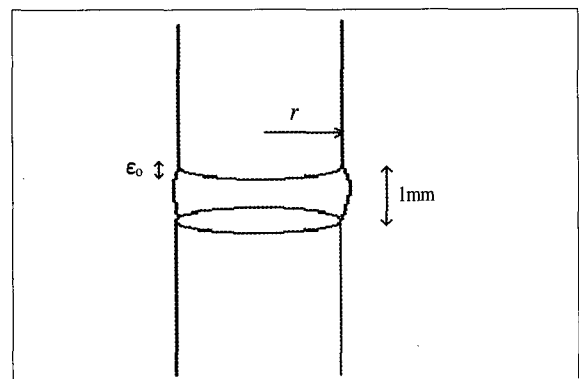


Figure 1-b. The geometry of measuring unit

여기서 E' 은 저장탄성계수 (*storage modulus*) 이고 E'' 는 손실탄성계수 (*loss modulus*) 이다. 저장탄성계수는 저장된 에너지의 척도, 즉 물질의 탄성 성분이다. 손실탄성계수는 열로서 상실된 에너지의 척도로서 물질의 점성성분이다.

복소수 함수를 사용하여 표현하면

$$\text{변형 } \epsilon(t) = \epsilon_o e^{i(\omega t)}$$

$$\text{응력 } \sigma(t) = \sigma_o e^{i(\omega t + \delta)}$$

$$E^* = \frac{\sigma(t)}{\epsilon(t)} = \frac{\sigma_o e^{i\delta}}{\epsilon_o} = \frac{\sigma_o}{\epsilon_o} (\cos \delta + i \sin \delta)$$

$$= E' + iE''$$

여기서 E' 는 실(저장)탄성계수 (*real storage modulus*), E'' 은 허(손실)탄성계수 (*imaginary loss modulus*), 그리고 E^* 은 복소탄성계수 (*complex modulus*)를 의미하며 그 크기는 다음과 같다.

$$\frac{\sigma_o}{\epsilon_o} = |E^*| = \sqrt{(E')^2 + (E'')^2}$$

E' 에 대한 E'' 의 비, E''/E' 을 손실 탄젠트 (*loss tangent, $\tan \delta$*)라 하고

Loss tangent = $\tan \delta = E''/E' = \text{energy loss/energy stored}$ 와 같이 주어지고 이는 곧 물질의 탄성에 대한 점성의 비를 의미한다 (Figure 3).

본 실험 장치의 측정 유닛의 acrylic rod 위에 놓여진 시편의 반지름을 r 이라 하면 응력 σ 는 load cell로 측정된 힘 F 를 단면적으로 나눈 $F/\pi r^2$ 로 주어진다 (Figure 1-b).

따라서 복소탄성계수 E^* , 저장탄성계수 E' , 그리고 손실탄성계수 E'' 는

$$E^* = \frac{\sigma_o}{\epsilon_o} = \frac{F_o}{\pi r^2 \epsilon_o} \quad (\text{식-1})$$

$$E' = \frac{F_o \cos \delta}{\pi r^2 \epsilon_o} \quad (\text{식-2})$$

$$E'' = \frac{F_o \sin \delta}{\pi r^2 \epsilon_o} \quad (\text{식-3) 와 같이 주어진다.}$$

3. 실험재료

두 종의 전, 구치 수복용 중점도 hybrid composites 인 Z100 (Z1, 3M Co., St, Paul, MN, USA) 과 Z250 (Z2, 3M Co., St, Paul, MN, USA), 그리고 두 종의 구치 수복용 packable composites 인 P60 (P6, 3M Co., St, Paul, MN, USA) 과 SureFil (SF, Densply, York, PA, USA) 이 측정에 사용되었다.

4. 실험방법

1) VOR을 사용한 압축 인장 시 복합레진의 점탄성의 측정

각 복합레진의 밀도 값과 저울을 이용하여 무게를 측정, 일정량 (19.63 mm³ = 지름 5 mm, gap 1 mm인 측정 유닛의 샘플 공간)의 복합레진을 취한 후 측정 유닛의 하위 acrylic rod에 올려놓은 후 rod 사이의 간격을 1 mm로 조절하였다. 파형발생기를 이용하여 상위 입력 rod의 진동 변위 진폭이 5 % (0.05 mm/1 mm)가 되도록 사인파형의 출력 전압을 조절하였다. LVDT에서 계측된 전압 파형과 load cell로부터의 출력 전압을 오실로스코프에 표시하여 이들 파형으로부터 변위 ϵ_o 와 힘 F_o 의 크기를 측정하고 힘 (응

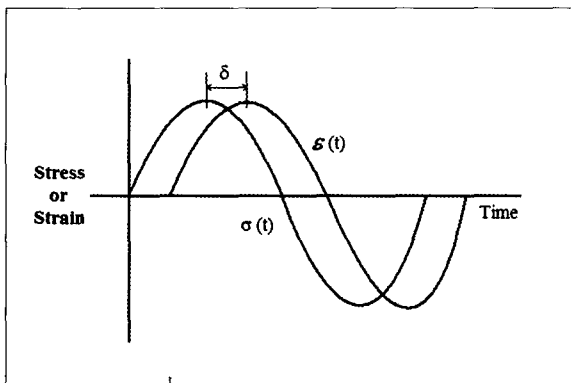


Figure 2. The relationship between strain $\epsilon(t)$, stress $\sigma(t)$ and phase angle δ in dynamic oscillatory test

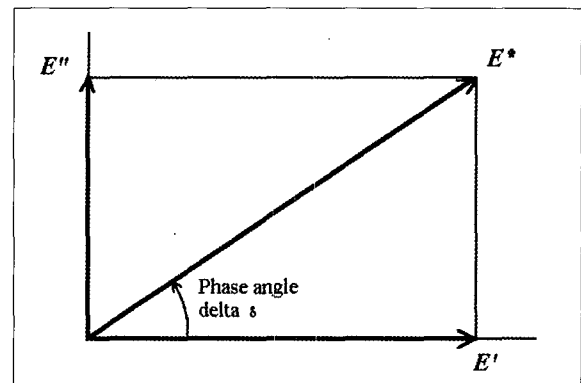


Figure 3. The relationship between storage (real) modulus E' , loss modulus (imaginary) modulus E'' , complex modulus E^* and phase angle δ in a complex plane

력)과 변위 사이의 위상차 δ 를 구하였다. 측정된 힘과 시편에 가해진 변위, 위상차, 그리로 측정 유니트의 기하학적 변수로부터 (식 1-3) 을 이용하여 저장탄성계수 E' , 손실탄성계수 E'' , 복소탄성계수 E^* , 그리고 손실 탄젠트 $\tan\delta$ 를 계산하였다. 진동 주파수를 0.1, 1, 2, 3, 5, 10, 20 Hz로 바꾸어 가며 주파수 변화에 따른 복합레진의 점탄성 변화를 관찰하였다. 측정은 23°C로 조절된 상태에서 수행되었다.

2) 회전 점도계를 사용한 전단변형 시의 복합레진의 점탄성의 측정

전단 변형에 의한 복합레진의 동적 점탄성 특성을 측정하기 위해 회전형 rheometer 인 AR2000 (TA instrument, Leatherhead, Surrey, UK)를 사용하였다. 본 연구에서는 복합레진의 성상이 호제프로 여러 측정 모듈 중 8 mm plate 를 사용하였다.

주파수 변화에 따른 동적 점탄성 특성의 측정 (dynamic frequency sweep test): 전단 변형 시 복합레진의 점탄성을 측정하고 전단을 변화에 따른 점도의 변화를 알아보기 위하여 시편을 23°C로 조절된 Peltier 위에 올려놓은 후 상 위 plate를 1.5 mm까지 접근시켰다. 잔여 응력이 사라진 것을 확인한 후 plate에 변형진폭 5 %의 전단변형으로 0.1-20 Hz 범위의 주파수로 정현파 진동 입력을 가한 후 plate에 나타나는 출력 응답특성을 측정하여 전단저장탄성계수 G' , 전단손실탄성계수 G'' , 위상각 δ , 복소점도 η^* 를 측정 비교하였다.

이상의 모든 측정은 각 샘플에 대하여 3회씩 반복하였다.

III. 결 과

1) VOR을 사용한 압축 인장 시 복합레진의 점탄성의 측정

VOR을 사용하여 측정한, 진동 주파수 변화에 따른 복합레진의 저장탄성계수 E' , 손실탄성계수 E'' , 복소탄성계수 E^* , 위상각 δ , 그리고 손실 탄젠트 $\tan\delta$ 는 Figure 4~8 과 같다. E' , E'' , E^* 모두 주파수가 증가함에 따라 같이 증가하는 양상을 보이고 제품에 따라 크기가 다르며 증가하는 형태에 있어 차이를 보였다. 주파수 변화에 따른 위상각 δ 와 loss tangent의 변화는 각 제품별로 고유의 거동을 나타냈고 위상각 δ 는 $\omega = 2$ Hz 일 때 9.4-49.3°의 범위를 보였다. 각 복합레진의 상대적 점도를 알아보기 위해서 $\omega = 2$ Hz 에서 Z1에 대한 복소탄성계수의 비를 알아보면 Z2, P6, SF가 각각 2.16, 4.798, 25.212 의 순으로 증가하였다 (Figure 9).

각 복합레진의 복소탄성계수 E^* 와 위상각 δ 를 phasor 표현법을 사용하여 $E^*(\omega)e^{j\delta} = |E^*(\omega)| \angle \delta$ 의 형태로 나타내면 Table 1 과 같고 $\omega = 2$ Hz 일 때 이를 극좌표상에 도시하면 Figure 10 과 같다. 주파수 $\omega = 0.1 - 20$ Hz의 범위에서 각 재료별 주파수 영역 페이저 표현법 (frequency domain phasor representation)¹⁹⁾으로 복소평면 위에 도시한 점들의 궤적 (locus of frequency domain phasor plot)은 Figure 11 과 같다.

2) 회전 점도계를 사용한 전단변형 시의 복합레진의 점탄성의 측정

각 복합레진의 복소전단탄성계수 G^* 와 위상각 δ 를

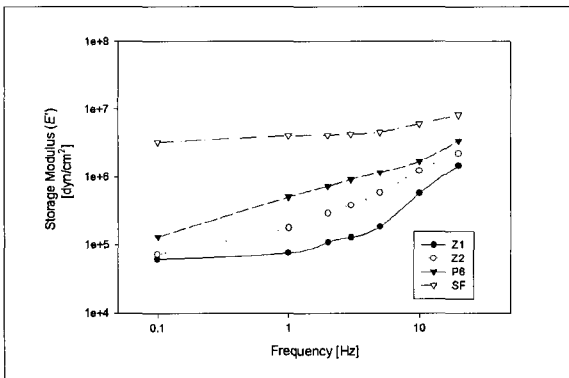


Figure 4. Storage modulus E' increased with increasing the frequency and showed differences in magnitude between brands

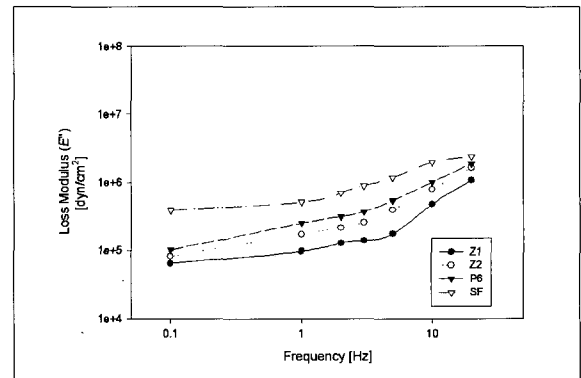


Figure 5. Loss modulus E'' increased with increasing the frequency and showed differences in magnitude between brands

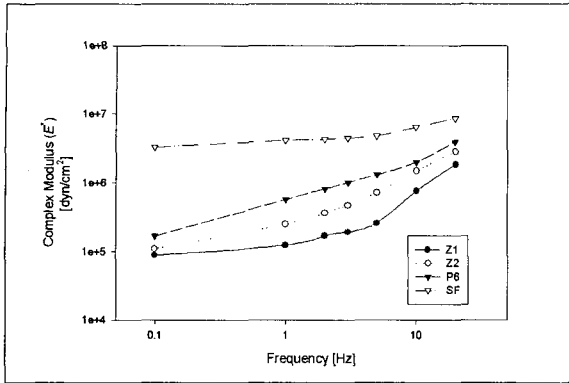


Figure 6. Complex modulus E^* increased with increasing the frequency and showed differences in magnitude between brands

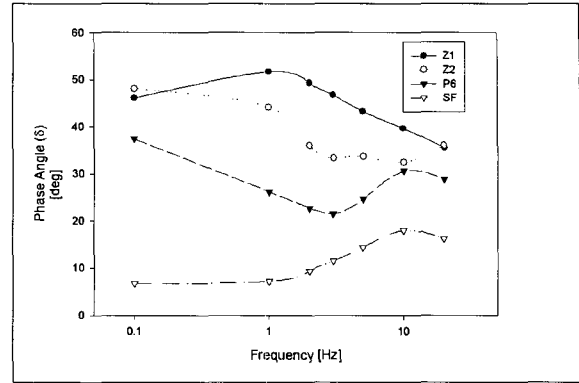


Figure 7. Phase angle δ of composite. The patterns of the change of δ of samples with increasing frequency showed the different characteristics of the composites between brands

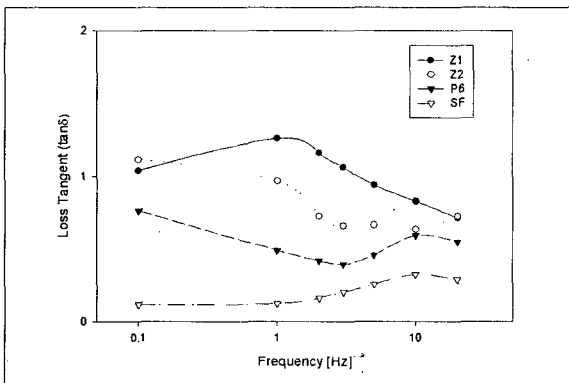


Figure 8. Loss tangent as a function of frequency

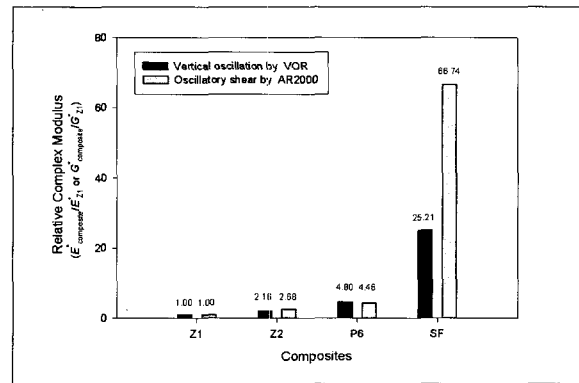


Figure 9. Relative complex modulus of composites normalized to that of Z1 at $\omega = 2$ Hz

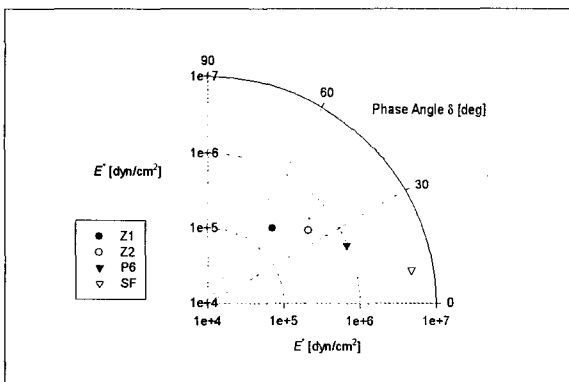


Figure 10. Phasor presentation of E^* and δ , $E^*e^{j\delta} = E^* \angle \delta$, of composites at $\omega = 2$ Hz in a polar coordinate system

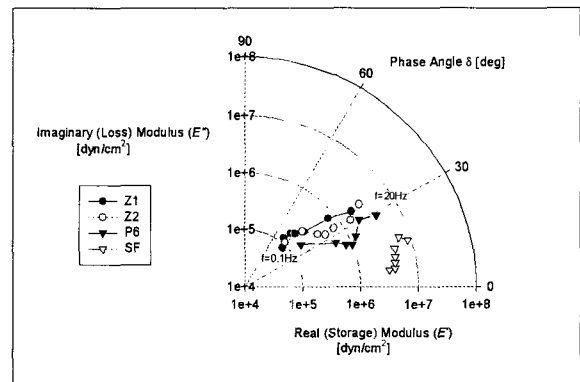


Figure 11. Locus of frequency domain phasor plots, $G^*(\omega)e^{j\delta} = |G^*(\omega)| \angle \delta$ of composites in a complex plane

Table 1. Phasor presentation of the complex modulus E^* and phase angle (δ) of composite resins at various frequencies, E^* (dyn/cm²) \angle δ (°)

| Frequency (Hz) | E^* (dyn/cm ²) \angle δ (°) | | | |
|----------------|--|-------------------------|-------------------------|-------------------------|
| | Z1 | Z2 | P6 | SF |
| 0.1 Hz | 88,524 \angle 46.2 | 109,522 \angle 48.1 | 166,609 \angle 37.3 | 3,262,206 \angle 6.8 |
| 1 Hz | 123,644 \angle 51.6 | 247,793 \angle 44.1 | 566,826 \angle 26.1 | 4,104,263 \angle 7.2 |
| 2 Hz | 168,419 \angle 49.3 | 363,836 \angle 36.0 | 808,077 \angle 22.7 | 4,246,091 \angle 9.4 |
| 3 Hz | 191,179 \angle 46.8 | 465,587 \angle 33.3 | 1,003,456 \angle 21.4 | 4,430,582 \angle 11.5 |
| 5 Hz | 255,963 \angle 43.2 | 711,240 \angle 33.6 | 1,300,336 \angle 24.6 | 4,743,748 \angle 14.4 |
| 10 Hz | 750,283 \angle 39.6 | 1,473,085 \angle 32.4 | 1,978,212 \angle 30.6 | 6,386,246 \angle 18.0 |
| 20 Hz | 1,831,307 \angle 35.5 | 2,792,553 \angle 36.0 | 3,900,518 \angle 28.8 | 8,624,179 \angle 16.2 |

Table 2. Phasor presentation of the complex shear modulus G^* and phase angle (δ) of composite resins at various frequencies, G^* (dyn/cm²) \angle δ (°)

| Frequency (Hz) | G^* (dyn/cm ²) \angle δ (°) | | | |
|----------------|--|-----------------------|-----------------------|-------------------------|
| | Z1 | Z2 | P6 | SF |
| 0.1 Hz | 4,431 \angle 47.4 | 6,833 \angle 57.0 | 15,301 \angle 51.0 | 2,126,703 \angle 10.7 |
| 1 Hz | 13,848 \angle 46.5 | 31,139 \angle 63.4 | 56,825 \angle 56.8 | 1,063,731 \angle 29.4 |
| 2 Hz | 18,101 \angle 51.2 | 48,430 \angle 68.0 | 80,631 \angle 60.3 | 1,208,043 \angle 35.9 |
| 3 Hz | 21,869 \angle 56.2 | 67,831 \angle 71.0 | 102,617 \angle 64.5 | 1,343,794 \angle 41.7 |
| 5 Hz | 26,515 \angle 62.0 | 95,021 \angle 74.4 | 134,556 \angle 68.4 | 1,605,553 \angle 43.7 |
| 10 Hz | 40,848 \angle 77.2 | 162,894 \angle 80.4 | 215,578 \angle 74.7 | 1,937,930 \angle 47.0 |
| 20 Hz | 92,627 \angle - | 302,600 \angle 89.9 | 373,271 \angle 84.9 | 2,398,952 \angle 55.7 |

phasor 표현법을 사용하여 $G^*(\omega)e^{\delta} = |G^*(\omega)| \angle \delta$ 의 형태로 나타내면 Table 2와 같다. 각 복합레진의 상대적 점도를 알아보기 위해서 $\omega = 2$ Hz 에서 Z1에 대한 복소전단탄성계수의 비를 알아보면 Z2, P6, SF가 각각 2.68, 4.46, 66.74 의 순으로 증가하였다 (Figure 9).

IV. 고 찰

본 연구에서 사용한 VOR 은 측정하고자 하는 물질의 성상에 따라 적절한 변형과 변형속도를 정할 수 있으며 측정된 힘과 위상각으로부터 응력, 저장탄성계수, 손실탄성계수, 손실탄젠트등을 계산해낼 수 있다.

본 실험에서 사용된 모든 복합레진의 저장탄성계수 E' 과 손실탄성계수 E'' 는 모두 진동주파수가 증가함에 따라 증가하는 양상을 보였으며 제품에 따라 많은 차이를 보였다. 여기서 E' 은 복합레진의 고체성질, 즉 탄성을 나타내며 E''

은 복합레진의 액체성질, 점성을 나타낸다. E' , E'' 과 더불어 중요한 물질함수인 loss tangent ($\tan\delta$), 즉 E''/E' 과 위상각 δ 를 살펴보면 이는 각 제품마다의 특징적 거동으로 진동 주파수가 변함에 따라 각 복합레진을 구성하는 기질과 무기질 filler 사이의 상호작용에 의한 것으로 생각된다. Loss tangent가 클수록 진동 입력 시 복합레진 내에서의 에너지 상실을 즉 damping이 크음을 나타내며 이는 주로 열로서 발산된다. E' 에 대한 E'' 의 상대적 수치인 loss tangent의 값이 높다고 해서 반드시 유동성이 높고 이 값이 낮다고 해서 유동성이 낮거나 교체 성질이 크다는 것을 의미하지는 않는다. 즉 점탄성 연구에서 이 값은 복합레진 사이의 상대적인 질적 특성을 의미하지 절대적인 양적 비교의 대상은 아니다.

각 재료별 상대적인 점도를 비교해 보기 위해서는 측정시의 주파수가 매우 중요한 변수이며 본 연구에서는 실제 임상에서 와동에 복합레진을 packing 시와 가장 비슷한 $\omega =$

2 Hz를 기준으로 하였다 (Figure 9). Figure 9에서 볼 수 있는 바와 같이 최근 수년간 임상에서 널리 사용된 전치 및 구치부 수복용 hybrid 복합레진인 Z1의 복소탄성계수를 기준으로 하였을 시 상대적인 복소탄성계수의 비는 2.16 ~ 25.21였다. 3M 회사에서 Z1의 후속 모델로 선보인 전구치부 혼용 복합레진 Z2는 Z1보다 약간 점도가 높은 2.16의 상대적 점도를 보였으며 구치부 전용 복합레진인 P6는 좀 더 높아 다섯 배 가까운 4.80의 상대적 점도를 나타냈다. packable 복합레진인 SF는 무려 25.21배의 점도를 보였다. 본 연구결과에서 알 수 있는 바와 같이 같은 종류의 복합레진이라 할지라도 그 점도의 차이는 매우 큼을 알 수 있고 이는 평판가압법을 이용하여 유동성레진의 상대적 점도를 평가한 Bayne 등²⁰⁾의 연구결과와 일치한다.

전단변형 시 나타나는 전단응력은 주로 레진 기질 안에 있는 무기질 filler의 slip 또는 rolling 현상에 대한 마찰력에 의해 유발된다. 그러나 임상에서 중점도 혹은 packable 레진과 같은 고점도 레진을 적용 시 사용하는 압축 동작에서는 주로 레진 기질 안에서 filler들 사이의 직접적인 충돌에 의한 마찰력으로부터 기인한 압축 저항에 의해 점탄성이 나타난다.

VOR로 측정된 압축 인장 시의 복소탄성계수는 회전점도계 AR 2000을 사용한 전단실험에 의한 복소탄성계수보다 $\omega = 2$ Hz 일 때 각각 7.5배 (Z2), 9.3배 (Z1), 10배 (P6) 크게 나타났으나 SF는 3.5배로 측정되었다 (Table 1 and 2). 전술한 바와 같이 압축 인장 시 filler의 직접적 충돌에 의한 마찰저항은 전단 시 filler의 미끄러짐 (slip) 또는 구름 (rolling) 현상에 의한 마찰력 보다 큰 것으로 알려져 있다²²⁾. 즉 전단 유동에서는 물질 입자가 구르는 일 (tumbling)과 늘어나는 일 (stretching)이 발생하는 것에 비해 압축 신장 유동에서는 구르는 일 보다는 주로 물질 입자가 직접 부딪히거나 늘어나는 일 (stretching)과 줄 서는 일 (aligning)이 발생한다. 전자는 약한 유동 (weak flow) 이고 후자는 강한 유동 (strong flow)이 된다. 따라서 본 실험 결과처럼 수직 진동 시 측정된 복소탄성계수가 전단시의 복소탄성계수보다 훨씬 큰 값으로 측정된 것으로 사료된다. SF는 다른 복합레진과 비교하여 상대적으로 전단 변형 시 훨씬 큰 복소탄성계수를 보였는 바 이는 전단 변형 시 큰 마찰력을 유발시키는 거친 filler 입자의 형태로부터 기인된 것이 아닌가 추정된다 (Figure 9). 또 하나 특징적인 현상은 위상각 δ 가 VOR에 의한 수직 진동의 경우 Z1, Z2, P6, SF의 순으로 감소하였으나 (점성보다는 탄성이 상대적으로 증가함을 의미) 전단 진동의 경우 Z2, P6, Z1, SF의 순으로 감소하였다. 이는 재료에 따라 압축 인장 변형과 전단 변형 시 점성과 탄성의 비가 약간씩 다르게 나타남을 보여준다.

임상에서 복합레진을 이용한 수복 시 와동에서의 적용 (placement)과 조각 (sculpting) 할 때의 동작은 크게

hollen back carver 등을 이용한 전단 (shearing), plugger를 이용한 압축 (pressing 또는 packing), flowable 레진과 같은 syringed, 그리고 솔을 이용한 brushing 등 4가지로 구별된다. 본 연구에서 사용된 VOR은 중, 고점도 복합레진을 사용하여 구치부 수복 시 주로 이용되는 압축 동작을 흉내내기에 적합하고 회전형 점도계는 flowable resin을 사용하여 수복 시, 적용 후 끌기 (apply and drag)를 흉내 낼 수 있는 전단실험에 적합할 것으로 사료된다.

복합레진의 다양한 점탄성 성질을 간략히 나타내고 시각적으로 표현하여 종류별 grouping을 쉽게 하기 위하여 각 시료의 복소탄성계수 E^* 와 위상각 δ 를 전기공학에서 주로 사용하는 페이저 표현법으로 $E^*(\omega) = E^*e^{i\delta} = E^* \angle \delta$ 와 같이 나타내면 Table 1과 같고 $\omega = 2$ Hz일 때 이를 극좌표상에 도시하면 Figure 10과 같다. 여기서 원점으로부터 각 점까지의 거리는 $|E^*|$ 이고 원점에서 각 점을 연결한 벡터와 x축 사이의 각이 위상각 δ 이다. 따라서 각 벡터의 x축 성분은 $|E^*| \cos \delta = E'$ 이고 y 축 성분은 $|E^*| \sin \delta = E''$ 이다. 본 도표에는 우리가 알고자 하는 모든 점탄성에 관한 정보가 담겨있으며 극좌표 평면상에서 각 점 사이의 상대적 거리는 각 복합레진 사이의 유변학적 친소관계를 나타낸다 할 수 있다¹⁹⁾.

주파수 변화에 따르는 복합레진의 점탄성변화의 거동을 알아보기 위하여 상기 페이저 표현법을 $\omega = 0.1 \sim 20$ Hz에 대하여 확장하여 그 페이저의 궤적을 복소평면 위에 도시하면 Figure 11과 같이 각 시편 별로 독특한 패턴을 나타낸다. 이 그래프들로부터 주파수가 증가함에 따른 실수 (저장)탄성계수와 허수 (손실)탄성계수의 변화와 비율을 직관적으로 관찰할 수 있으며 복소탄성계수 및 위상각의 변화도 즉각 알 수 있는 큰 장점과 유용성을 지닌다. 이러한 도시법을 주파수영역 페이저 표현법 (frequency domain phasor representation) 이라 하고 이는 각 재료의 유변학적 지문 (rheological fingerprint)과 같다 볼 수 있다¹⁹⁾.

일반적으로 복합레진의 점탄성은 레진 기질의 종류와 비율, filler 입자의 형태와 크기 및 양에 의해 크게 영향을 받으며 특히 filler 입자 사이의 interlocking 및 filler 입자와 기질 사이의 interfacial interaction에 의해 좌우된다^{3,4,16)}. 복합레진의 점도 또는 응축성 (packability)을 증가시키는 방법으로는 첫째, filler 함량을 증가시키는 방법이 있으나 이는 porosity의 증가를 가져올 수 있으며 둘째, 거친 표면을 갖는 filler를 사용할 수 있고 셋째, incorporate glass fiber를 첨가시키는 방법이 있다^{3,4,16)}.

보통 filler의 양을 줄이면 점성이 감소되고 늘이면 점도가 증가될 것으로 생각되나 Lee¹⁹⁾의 연구 결과에 의하면 filler 량과 점도 사이에 직접적이고 선형적인 상호관련성은 관찰되지 않았고 단지 약한 양의 상관관계를 나타낸다 하였다. 즉 복합레진의 점도는 보다 많은 여러 요소에 의해 결정된

다 하겠다. 일반적으로는 다른 모든 조건이 동일할 경우 percent volume fraction 이 클수록 점도가 증가하게 되며 같은 volume %에서는 입자의 모양이 구형 (spheres) < 격자 (grains) < 판상 (plates) < 막대형 (rods) 의 순으로 증가하는 것으로 알려져 있다. 또한 glass fiber 와 같은 막대형 입자의 경우 길이 / 지름의 비율이 클수록 점도가 커진다¹⁶⁾.

일반적으로 임상에서 부딪히는 모든 경우의 수복에 대하여 적용할 수 있는 술식과 조작성을 뒷받침 할 수 있는 재료는 드물다. 게다가 편리한 조작성과 뛰어난 중합 후 물성을 다 같이 지닌 이상적인 재료는 더욱 존재하지 않는다. 즉 모든 좋은점을 지닌 재료란 역사적으로 한가지도 탁월한 장점을 지니지 못했다 할 수 있다. 따라서 임상가는 특정용도에는 그 용도에 가장 적절한 점성 (조작성)과 중합 후 물성을 고려하여 각 임상적 상황에 맞는 재료를 사용하는 것이 최선의 방법이라 생각된다.

유변학적 연구는 크게 변형과 흐름이란 현상을 관측하여 (건보기 점탄성의 측정과 같은) 그 결과를 해석하는 현상론적, 거시적 접근방법과 이러한 현상을 나타내는 물질의 역학적 특성을 (점탄성을) 나타내는 요인들에 대한 물질구조 (내부구조, 분자구조)의 입장에서 해석하려는 분자론적, 현미경적, 미시적 접근 방법이 있는 바 본 연구에서는 거시적 접근에 제한을 두었다. 앞으로 본 연구의 결과를 가져 온 레진 기질을 구성하는 단량체의 종류 및 비율, 무기질 filler의 종류 및 형태와 양, 기질과 filler, filler와 filler 사이의 상호작용 및 유화제와 같은 소량 첨가물의 효과와 같은 여러 요인들에 대한 미시적 접근과 해석에 대한 연구가 행해져야 할 것으로 사료된다. 또한 본 연구에서 얻어진 복합레진의 점탄성 특성이 각 재료를 실제 임상에 적용 시 와동에의 적합성, 교합면 조각 형성의 수월성 및 그 형태를 유지하는 능력에 어떠한 영향을 주는가에 대한 추가적인 연구가 필요할 것으로 생각된다.

V. 결 론

1. 복합레진의 조작성에 영향을 미치는 복합레진의 점탄성은 제품에 따라 큰 차이를 보였다. 복소탄성계수 E^* 을 기준으로 한 복합레진의 점도는 구치 수복용 packable composite인 sureFil이 가장 높았고 P60, Z250, Z100 의 순이었다.
2. 본 연구에서 제작된 수직진동형 rheometer는 중, 고점도 복합레진의 동력학적 점탄성을 측정하는데 비교적 단순하면서 유용하게 쓰일 수 있는 장치였다.
3. 복소평면상에 복소탄성계수 E^* 와 위상각 δ 를 주파수영역 페이지 표현법, $E^*(\omega)e^{\delta} = |E^*(\omega)|\angle\delta$ 으로 표시하였고 그 페이지의 궤적은 각 복합레진의 고유한 점탄성 특성을 표현할 수 있는 유용한 기법이였다.

4. 압축 인장시의 복소탄성계수는 전단변형시의 복소탄성계수 보다 훨씬 큰 값을 나타냈다.

참고문헌

1. Craig RG & Powers JM. Restorative dental materials. 11th ed., Mosby co., p91-98, 231-251, 2002.
2. Bayne SC, Thompson JY, Swift EJ, et al. A characterization of first-generation flowable composites. *J Am Dent Assoc* 129:567-577, 1998.
3. Leinfelder KF, Prasad A. A new condensable composite for the restoration of posterior teeth. *Dent Today* 17(2):112-116, 1998.
4. Leinfelder KF, Radz GM, Nash RW. A report on a new condensable composite resin. *Compendium* 19(3):230-237, 1998.
5. Opdam NJM, Roeters JJM, Peters TCRB, et al. Consistency of resin composites for posterior use. *Dent Mater* 12:350-354, 1996.
6. Ferracane JL, Moser JB, Greener EH. Rheology of composite restoratives. *J Dent Res* 60(9):1678-1685, 1981.
7. Tyas MJ, Jones DW, Rizkalla AS. The evaluation of resin composite consistency. *Dent Mater* 14:424-428, 1998.
8. Al-sharaa KA, Watts DC. Stickiness prior to setting of some light cured resin composites. *Dent Mater* 19:182-187, 2003.
9. Willems G, Lambrechts P, Braaem M, et al. A classification of dental composites according to their morphological and mechanical characteristics. *Dent Mater* 8:310-319, 1992.
10. Duran RL, Powers JM, Craig RG. Viscoelastic and dynamic properties of soft liners and tissue conditioners. *J Dent Res* 58(8):1801-1807, 1979.
11. Goldberg AJ. Viscoelastic properties of silicon, polysulfide, and polyether impression materials. *J Dent Res* 53(5):1033-39, 1974.
12. Watt DC. Elastic moduli and visco-elastic relaxation. *J Dent* 22:154-158, 1994.
13. McCabe JF, Bowman AJ. The rheological properties of dental impression materials. *Brit dent J* 151:179, 1981.
14. Jacobsen PH, Whiting R, Richardson PCA. Viscosity of setting anterior restorative materials. *Brit dent J* 143:393, 1977.
15. Braden M. Viscosity and consistency of impression rubbers. *J Dent Res* 46(2):429-433, 1967.
16. Barnes HA, Hutton JF, Walters K. An introduction to rheology. Elsevier Science Publishing co. 1989.
17. 문탁진. 유변학. 1st ed., 민음사, p7-80, 190-195, 1988.
18. 김상용. 고분자물리학. 2nd ed., 서울대학교출판부, p7-26, 1994.
19. Lee IB, Son HH, Um CM. Rheological Properties of flowable, conventional hybrid, and condensable composite resins. *Dent Mater* 19:298-307, 2003.
20. Kim JW, Cho MS, Choi HJ, et al. Electrorheological fluid characterization via a vertical oscillation rheometer. *Polymer test* 20:913-918, 2001.
21. Cho MS, Choi YJ, Choi SG, et al. Viscoelasticity of an electrorheological fluid using a vertical oscillation rheometer. *J Mole liquid* 75:13-24, 1998.
22. 현재진 외. 유변학의 이론과 응용. 1st ed., 한국유변학회, p239-237, 2001.