

치과용 복합레진의 중합 전 slumping resistance와 점탄성

서희연 · 이인복*

서울대학교 치의학대학원 치과보존학교실

ABSTRACT

SLUMPING RESISTANCE AND VISCOELASTICITY OF RESIN COMPOSITE PASTES

Hee Yeon Suh, In Bog Lee*

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

The aim of this study was to develop a method for measuring the slumping resistance of resin composites and to relate it to the rheological characteristics.

Five commercial hybrid composites (Z100, Z250, DenFil, Tetric Ceram, ClearFil) and a nanofill composite (Z350) were used to make disc-shaped specimens of 2 mm thickness. An aluminum mold with square shaped cutting surface was pressed onto the composite discs to make standardized imprints. The imprints were light-cured either immediately (non-slumped) or after waiting for 3 minutes at 25°C (slumped). White stone replicas were made and then scanned for topography using a laser 3-D profilometer. Slumping resistance index (SRI) was defined as the ratio of the groove depth of the slumped specimen to that of the non-slumped specimen. The pre-cure viscoelasticity of each composite was evaluated by an oscillatory shear test and normal stress was measured by a squeeze test using a rheometer. Flow test was also performed using a flow tester. Correlation analysis was performed to investigate the relationship between the viscoelastic properties and the SRI.

SRI varied between the six materials (Z100 < DenFil < Z250 < ClearFil < Tetric Ceram < Z350). The SRI was strongly correlated with the viscous (loss) shear modulus G' but not with the loss tangent. Also, slumping resistance was more closely related to the resistance to shear flow than to the normal stress.

Slumping tendency could be quantified using the imprint method and SRI. The index may be applicable to evaluate the clinical handling characteristics of composites. [J Kor Acad Cons Dent 33(3):235-245, 2008]

Key words: Slumping resistance, Viscoelasticity, Resin composites, Rheology, Handling characteristics

- Received 2008.4.3., revised 2008.4.26., accepted 2008.4.29.-

I. 서 론

복합레진은 심미적 특성과 더불어 높아진 마모저항과 같은 개선된 물성, 아말감 사용의 유해성에 대한 우려로 인해 전치부뿐만 아니라 구치부의 수복에도 사용이 크게 증가하고 있다. 진료시간을 줄이고 보다 효율적이고 심미적인 수복치료를 하기 위해서는 적절한 조작성을 갖는 복합레진의 선택이 중요하다. 점성, 탄성, 흐름성, packability, 와동벽에의 적합성과 같은 수복재료의 유변학적 성질이 조작성과

* Corresponding Author: In Bog Lee

Department of Conservative Dentistry,
School of Dentistry, Seoul National University
275-1 Yeongeon-Dong, Jongno-Gu, Seoul, 110-768, Korea
Tel: 82-2-2072-3953 Fax: 82-2-2072-3859
E-mail: inboglee@snu.ac.kr

관련된다. 그 중에서도 slumping에 저항하는 성질과 수기에 달라 붙지 않는 성질이 중요하다¹⁻⁵⁾.

복합레진의 점도를 비교하기 위한 다양한 측정방법이 있다. 일정량의 복합레진을 평판으로 일정시간 가압 후 퍼진 정도를 측정 (load and measure diameter)하는 방법^{4,6)}, 일정 무게의 추를 복합레진 위에 올려 놓아 떨어지는 속도를 측정 (load and measure drop speed)하는 방법, 일정 속도로 복합레진을 가압할 때 필요한 힘을 측정 (press with uniform speed and measure force)하는 방법이 있다^{7,8)}. 그러나 이들 방법으로는 복합레진의 상대적인 점도만을 비교할 수 있을 뿐, 재료의 점성과 탄성에 대한 정량적 평가는 할 수 없다.

탄성 (elasticity)은 응력 (stress)이 변형량 (strain)에 비례하는 고체의 성질을 가리킨다. 이에 반해 액체와 같은 점성체에서는 응력이 변형의 속도 (strain rate)에 비례한다^{9,10)}. 복합레진과 같은 대부분의 치과재료는 점성과 탄성을 함께 지닌 점탄성 재료이다. 그러므로 조작성과 같이 복합레진이 외력에 대해 반응하는 특성은 탄성과 점성의 크기와 탄성과 점성간 비율에 크게 의존한다. Lee 등²⁾은 동적전단진동실험 (dynamic oscillatory shear test)을 이용한 연구결과, 복합레진은 점도에 따라 flowable, low viscosity, medium viscosity universal hybrid, high viscosity, packable 등으로 구분되고 같은 종류의 복합레진이라도 점성과 탄성의 크기와 비율에 차이가 있다고 보고하였다.

구치부 수복 시 중합수축에 의한 부작용을 줄이면서 충분한 중합을 이루고 finishing과 polishing에 소요되는 시간을 줄여 해부학적 교합면 형성을 효율적으로 하기 위해 치과의사들은 “successive build up technique”을 사용한다^{11,12)}. 이는 초기에는 수평 적층법을 이용해 와동의 기저를 채운 후 최종 층에서 교합면의 미세한 해부학적 형태를 재현하기 위해 복합레진의 점탄성을 이용하여 add-on 술식으로 자연스럽고 불룩한 교두와 융선, groove를 형성하며, 점도가 매우 높은 복합레진의 경우 plastic한 성질을 이용하여 복합레진 적용 기구로 교합면을 형성하는 것이다. 이 때, 복합레진의 slumping 경향이 크면 광중합 할 때까지 치과의사가 형성해 놓은 해부학적 형태를 그대로 유지하지 못하므로 중합 후 조정과 연마에 더욱 많은 시간이 소요된다. 이러한 slumping 경향은 복합레진의 점성과 탄성의 절대값 및 상대적인 값과 큰 관련이 있다.

이상적인 복합레진은 기구에 달라붙지 않고 (non sticky) 와동에 적용 후 흐르지 않는 성질 (slumping resistance)이 중요하다. Al-Sharaa와 Watts¹⁾는 복합레진의 기구에 대한 stickiness를 측정하여 제품에 따라 많은 차이가 있음을 보고하였다. 그러나 조작성에 중요한 slumping resistance에 대한 연구는 드물다.

본 연구의 목적은 복합레진의 slumping resistance를 측

정할 수 있는 방법을 개발하고, rheometer를 이용해 측정된 복합레진의 여러 유변학적 성질과 slumping resistance와의 상호 관련성을 밝히는 것이며, 이로써 새로운 복합레진 개발 시 조작성의 개선에 필요한 기초자료를 제공하고 임상가의 복합레진 선택 시 조작성에 관한 유용한 정보를 제시하고자 한다.

Ⅱ. 실험재료 및 방법

전치 및 구치부 수복용으로 시판되는 다섯 종류의 universal hybrid 복합레진과 한 종류의 nano filled 복합레진이 본 연구에서 사용되었다. 각 재료의 code와 구성성분 및 제조회사는 Table 1과 같다.

1. 복합레진의 slumping resistance 측정

복합레진 paste 62 mm³를 spacer가 개재된 두 개의 glass slides로 눌러 2 mm 두께의 디스크 모양 시편을 만들었다. 편평하고 매끈한 표면을 만드는 과정에서 복합레진이 slide glass에 달라 붙는 것을 막기 위해 먼저 물에 적신 Mylar strip을 상방의 slide glass와 복합레진 사이에 끼워 넣었다. 사각형의 돌기를 가진 알루미늄 형판 (Figure 1.a)으로 디스크 모양의 복합레진 시편을 눌러 홈을 만들었다 (Figure 1.b). 한 set의 시편은 알루미늄 형판이 그 자리에 있는 채로 중합되었다. 광 중합 후, 형판을 제거하면 “non-slumped” imprint가 남게된다. 다른 set의 시편은 형판으로 누른 후 즉시 주형을 제거하였다. 그리고 시편을 25°C에서 3분간 slump 되도록 두었다가 광중합하여 “slumped” imprint를 얻었다. 두 종류의 시편 모두에 대해 Polyvinylsiloxane 인상재료 (Extrude® Wash, Kerr, Orange, CA, USA) 인상을 채득한 후 흰 경석고 복제물을 제작하였다. 이를 1 μm의 해상도를 갖는 custom laser 3-D profilometer 위에 올려놓고 1 mm/s의 속도로 scan 하여 표면의 단면 형상을 얻었다 (Figure 2). 각 복합레진에 대해 세 개의 “non-slumped” 시편과 다섯 개의 “slumped” 시편을 제작하였다.

Slumping Resistance Index (SRI)를 다음과 같이 정의하였다 (Figure 3):

$$SRI = \frac{H_s - L_s}{H_i - L_i}$$

여기서, H_i 는 “non-slumped” imprint에서 기저부와 최고점 사이의 거리를, L_i 는 “non-slumped” imprint의 기저부에서 홈까지의 거리를 의미한다. H_s 는 “slumped” imprint에서 기저부와 최고점 사이의 거리를, L_s 는

Table 1. The resin composites used in this study

Product	Code	Composition	Manufacturer
Z100 (Lot 5XY)	Z1	Resin: Bis-GMA, TEGDMA Filler: 66 vol%, 0.01 - 3.5 μm , zirconia/silica	3M ESPE, St Paul, MN, USA
Z250 (Lot 6MFJ)	Z2	Resin: UDMA, Bis-GMA, Bis-EMA, TEGDMA Filler: 82 wt% (60 vol%) 0.01 - 3.5 μm zirconia/silica	3M ESPE, St Paul, MN, USA
Z350 (Lot 5BR)	Z3	Resin: UDMA, Bis-GMA, Bis-EMA, TEGDMA Filler: 78.6 wt%, nonagglomerated 20 nm silica particles 0.6 - 1.4 μm agglomerated zirconia / silica nanoclusters consisting of agglomerates of primary zirconia / silica particles with size of 5 - 20 nm	3M ESPE, St Paul, MN, USA
DenFil (Lot DF7819630)	DF	Resin: Bis-GMA, TEGDMA Filler: 80 wt% Barium aluminosilicate (average particle size: 1) Fumed silica (average particle size: 0.04)	Vericom CO., Anyang, Korea
Tetric Ceram (K 14249)	TC	Resin: UDMA, Bis-GMA, Bis-EMA, TEGDMA Filler: 79.0 % wt Barium glass, ytterbium trifluoride, Ba-Al-fluorosilicate glass, highly dispersed silicone dioxide, spheroid mixed oxide particle size 0.04 - 3.0, mean particle size 0.7	Ivoclar Vivadent AG, Schaan, Liechtenstein
ClearFil AP-X (Lot 917AB)	CF		Kuraray Medical Inc. Okayama, Japan

Z350 is the same as Filtek Supreme (body) as sold in the US market.

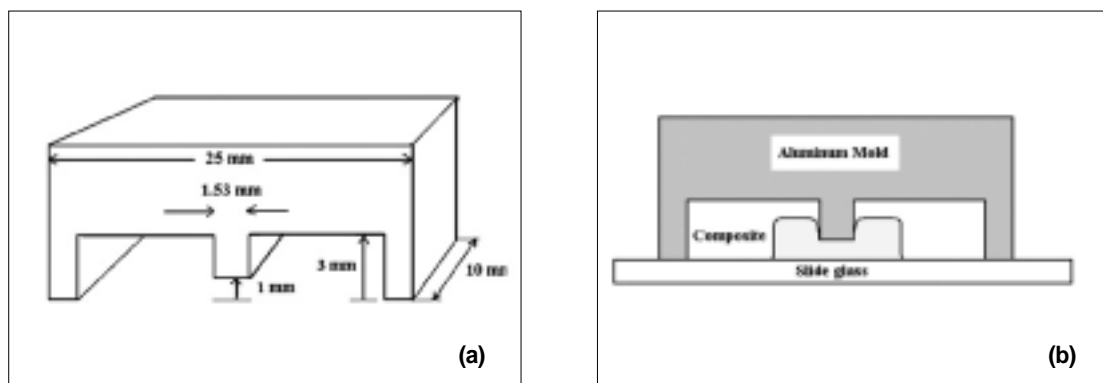


Figure 1. (a) Dimension of the aluminum mold used to imprint on composite discs.
(b) The procedure to make an imprint on a composite disc with the aluminum mold.

“slumped” imprint의 기저부에서 홈까지의 거리를 의미한다. SRI는 0 에서 1사이의 값을 나타내며, SRI 값이 1이라는 것은 전혀 slumping 되지 않음을, SRI 값이 0인 것은 완전히 slumping되어 평탄해짐을 의미한다.

2. 중합 전 복합레진의 점탄성 (viscoelasticity) 측정

복합레진의 SRI 값과 중합 전 점탄성 사이의 관련성을 연구하기 위해 회전형 rheometer (AR 2000, TA

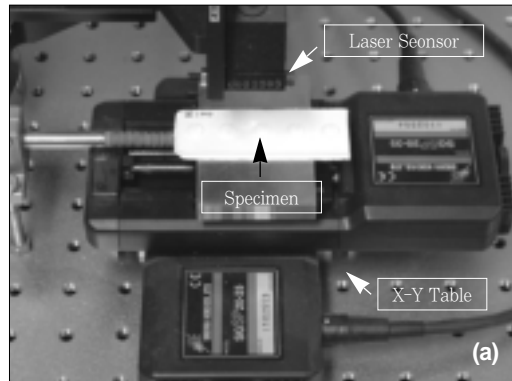


Figure 2. (a) The laser 3D profilometer used to scan the surface profiles of the replica stone casts of composite discs before and after slumped.

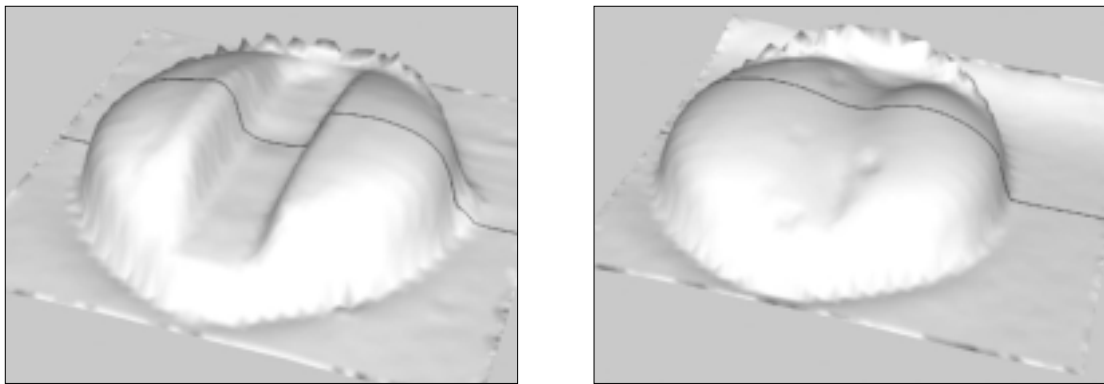


Figure 2. (b) 3D profiles of before and after slumped of composite discs of Z100 at 25°C.

Instrument, New Castle, DE, USA)를 이용한 동적회전 전단실험 (dynamic oscillatory shear test)을 시행하였다. 사용된 geometry는 지름 8 mm의 quartz parallel plates였다. 일정 양의 복합레진 paste를 rheometer의 하방 plate에 위치시키고 상방 plate는 하방 plate 위 2.0 mm 거리에 위치시킨 후에 과량의 paste는 제거하였다. 잔류응력 (residual normal stress)이 사라진 이후에 진동주파수 $\omega = 1$ Hz, 전단진폭 (shear strain) 0.01 - 1 범위를 가지는 strain sweep test를 시행하였다. 측정시의 온도는 25°C였다.

동적회전전단실험에서, oscillation frequency가 ω 이고 응력 (stress)과 변형 (strain)의 위상차 (phase difference)가 δ 라면, 변형과 응력의 관계는 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$\begin{aligned} \text{전단 변형 (shear strain)} \quad \gamma(t) &= \gamma_o e^{i(\omega t)}, \\ \text{전단 응력 (shear stress)} \quad \sigma(t) &= \sigma_o e^{i(\omega t + \delta)}, \\ \text{복소전단계수 (complex shear modulus)} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} G^* &= \frac{\sigma(t)}{\gamma(t)} = \frac{\sigma_o}{\gamma_o} e^{i\delta} = \frac{\sigma_o}{\gamma_o} (\cos \delta + i \sin \delta) \\ &= G' + iG'', \end{aligned}$$

여기서 G' 은 저장(실)전단계수 (shear storage (real) modulus)를, G'' 은 손실(허)전단계수 (shear loss (imaginary) modulus)를 의미한다.

복소전단계수 (complex shear modulus)의 크기는 다음과 같이 주어진다.

$$G^* = \frac{\sigma_o}{\gamma_o} = \sqrt{(G')^2 + (G'')^2}$$

그리고 복소점도 (complex viscosity)는 $\eta^* = \frac{G^*}{\omega}$ 로 나타낼 수 있다.

G' 은 전단탄성계수 (elastic shear modulus)로 응력과 변형간의 위상차 없이 저장되는 에너지의 측정치이며 물질의 탄성을 의미한다. G'' (viscous shear modulus)은 물질의 점성을 의미하며 열로서 소실되는 에너지의 측정치이다.

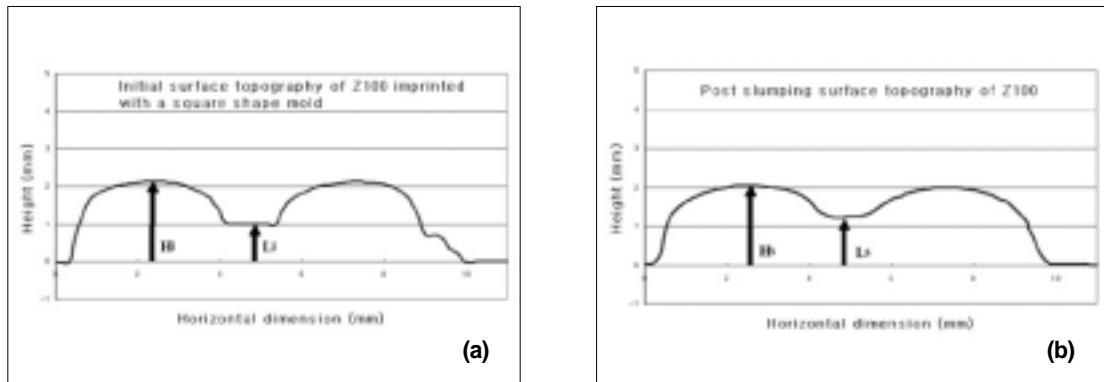


Figure 3. Representative line profiles of before and after slumped of composite discs of Z100 at 25°C.

(a) Initial surface topography of Z100 right after imprinted with a square shaped mold.

(b) Post slumped surface topography of Z100 after three minutes.

The slumping resistance index (SRI) was defined as $\frac{H_s - L_s}{H_i - L_i}$ (H_i , L_i : before slumping heights of the highest and lowest point from the base line respectively; H_s , L_s : after-slumping heights of the highest and lowest point from the base line respectively).



Figure 4. The flow tester.

두 값의 비는 G''/G' 는 손실탄젠트 (loss tangent, $\tan \delta$) 로서 물질의 점성성질과 탄성성질의 비 (energy loss/energy stored) 를 의미한다.

각 재료에 대해 3회의 측정을 하였으며 측정된 결과로부터 strain을 변수로 하는 G' , G'' , $\tan \delta$ 와 η^* 값을 얻어 비교하였다.

3. Squeeze test

진료실에서 복합레진을 와동에 넣고 다져 넣을 때 느껴지

는 점도를 비교하기 위해 복합레진을 수직가압하여 점도를 측정하였다. 실험 2 에서와 같은 부피의 복합레진을 8 mm parallel plates 사이에 놓고 상방 plate를 하방 plate 위 2 mm 에 위치시킨 후, 과량의 재료를 제거하였다. 잔류응력 (residual normal stress)이 소실되고 나서, 상방 plate를 0.5 mm/s의 속도로 하강시켜 복합레진을 3 초 동안 압착 할 때 나타나는 normal stress를 측정하였다. 압착 시작 2 초 후에 측정한 응력 값이 복합레진의 점도를 비교하는데 사용되었다. 25°C에서 각 복합레진에 대해 세 번씩 측정하였다.

4. Flow test

62 mm³의 복합레진 paste를 flow tester (Figure 4) 에 위치시키고 1865.5 gm의 무게를 가진 평판으로 복합레진을 1 분 동안 가압 후 시편을 광중합하고 레진의 직경을 측정하였다. 25°C에서 여섯 종의 복합레진에 대해 각기 세 번씩 측정하였다.

5. 통계 분석

각 복합 레진의 측정값들을 one way ANOVA와 post-hoc test로 사후 검정 하였고 (유의수준 $\alpha = 0.05$) strain sweep test, squeeze test, 그리고 flow test 결과와 SRI의 관련성을 알아보기 위해 spearman correlation analysis와 non-linear regression analysis를 시행하였다.

III. 실험결과

1. 복합레진의 slumping resistance index (SRI)

SRI는 0.33 - 0.96 사이 값을 나타냈으며 Z1 < DF < Z2 < CF < TC < Z3 의 순서로 증가하였다 (Table 2, Figure 5).

2. 동적진동실험에 의한 복합레진 호제의 점탄성

전단탄성계수 G' 와 전단점성계수 G'' 는 변형 (strain)이 증가함에 따라 증가하는 경향을 보였고 그 증가율은 복합레진의 종류에 따라 차이가 있었다 (Figure 6.a, b). 손실탄젠트, $\tan \delta$ 는 변형의 증가에 대해 각 제품별로 다른 양상을 보였다 (Figure 6.c).

전단점성계수 G'' 와 복소점도 η^* 는 strain = 0.08 에서 DF < Z1 < Z2 < CF < TC < Z3 순으로 증가하였으며, 전단탄성계수 G' 는 DF < CF < Z1 < Z2 < TC < Z3 순으로 증가하였다. 손실탄젠트 $\tan \delta$ 는 TC < Z3 < Z1 < DF < Z2 < CF 순이었다 (Table 2).

본 연구에서는 strain = 0.08 일 때의 점탄성 측정치와 SRI 값을 비교하였다. 이는 형판으로 레진 디스크를 인기할 때에는 순간적으로 strain = 0.5 에 가까운 큰 변형이 유발되지만, 실제 slumping 중에는 외부에서 변형력이 가해지지 않기 때문이다.

3. squeeze test에 의한 복합레진의 점도

본 연구에서 사용된 6 중 복합레진의 normal stress는 0.31 - 1.59 MPa 의 값을 나타냈다. TC가 가장 큰 normal stress 값을 나타냈으며 Z3 > DF > Z2 > CF > Z1 순이었다 (Table 2).

4. Flow test

압착되어 펼쳐진 레진 디스크의 직경은 11.9 - 19.7 mm 이었고 TC < DF < Z3 < Z2 < CF < Z1 순으로 증가하였다 (Table 2).

Table 2. a) The elastic (storage) shear modulus G' , viscous (loss) shear modulus G'' , loss tangent $\tan \delta$, and complex viscosity η^* of composites at the frequency of 1Hz, strain of 0.08 in the strain sweep test at 25°C

Composite	Storage modulus G' (Pa)	Loss modulus G'' (Pa)	Loss tangent $\tan \delta$	Complex viscosity η^* (Pa.s)
Z1	1110 (497) ^a	1541 (769) ^a	1.37 (0.099)	302 (145) ^a
Z2	1538 (39) ^b	2477 (46) ^a	1.58 (0.107)	464 (7) ^b
Z3	18800 (1725) ^d	21753 (1067) ^d	1.16 (0.048)	4576 (307) ^e
DF	626 (265) ^b	948 (194) ^a	1.60 (0.301)	181 (49) ^a
TC	8775 (1223) ^c	5085 (586) ^c	0.58 (0.013)	1620 (211) ^d
CF	1053 (20) ^a	3072 (73) ^b	2.92 (0.024)	517 (12) ^c

b) Normal stresses measured by squeeze test, spreaded diameter measured by flow test and SRI at 25°C

Composite	Normal stress (MPa)	Spreaded diameter when pressed (mm)	SRI
Z1	0.31 (0.09) ^a	19.7 (0.50) ^d	0.33 (0.11) ^a
Z2	0.92 (0.05) ^b	14.5 (0.47) ^b	0.81 (0.09) ^c
Z3	1.41 (0.13) ^c	13.6 (0.44) ^b	0.96 (0.05) ^d
DF	1.37 (0.14) ^{cd}	12.0 (0.05) ^a	0.61 (0.08) ^b
TC	1.59 (0.31) ^d	11.9 (0.06) ^a	0.95 (0.03) ^d
CF	0.38 (0.04) ^a	16.1 (0.20) ^c	0.84 (0.06) ^c

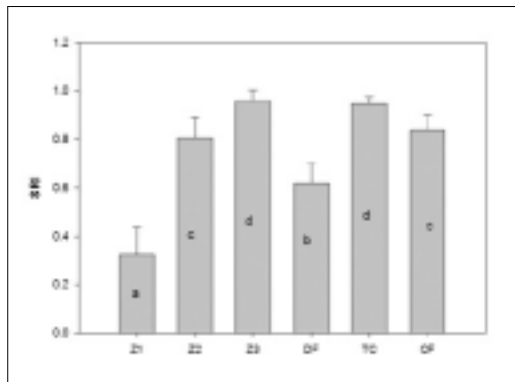


Figure 5. Slumping resistance index (SRI) of composites imprinted with square shaped molds.

SRI와 전단점성계수 G'' ($R = 0.94$) 간에는 강한 양의 상관관계를 보였다 (Table 3). 또한 SRI 값은 normal stress ($R = 0.71$), 전단탄성계수 G' ($R = 0.71$) 와도 연관성을 보였다. 반면에 손실탄젠트 $\tan \delta$ ($R = -0.37$), flow test에 의한 spreaded diameter ($R = 0.49$) 와는 낮은 상관계수를 나타냈다. 복합레진의 SRI를 전단점성계수 G'' 에 대한 식으로 나타냈을 $y = a \ln(x-x_0)$ (때 와 같은 비선형 logarithmic regression curve에 잘 부합되었다 (Figure 7).

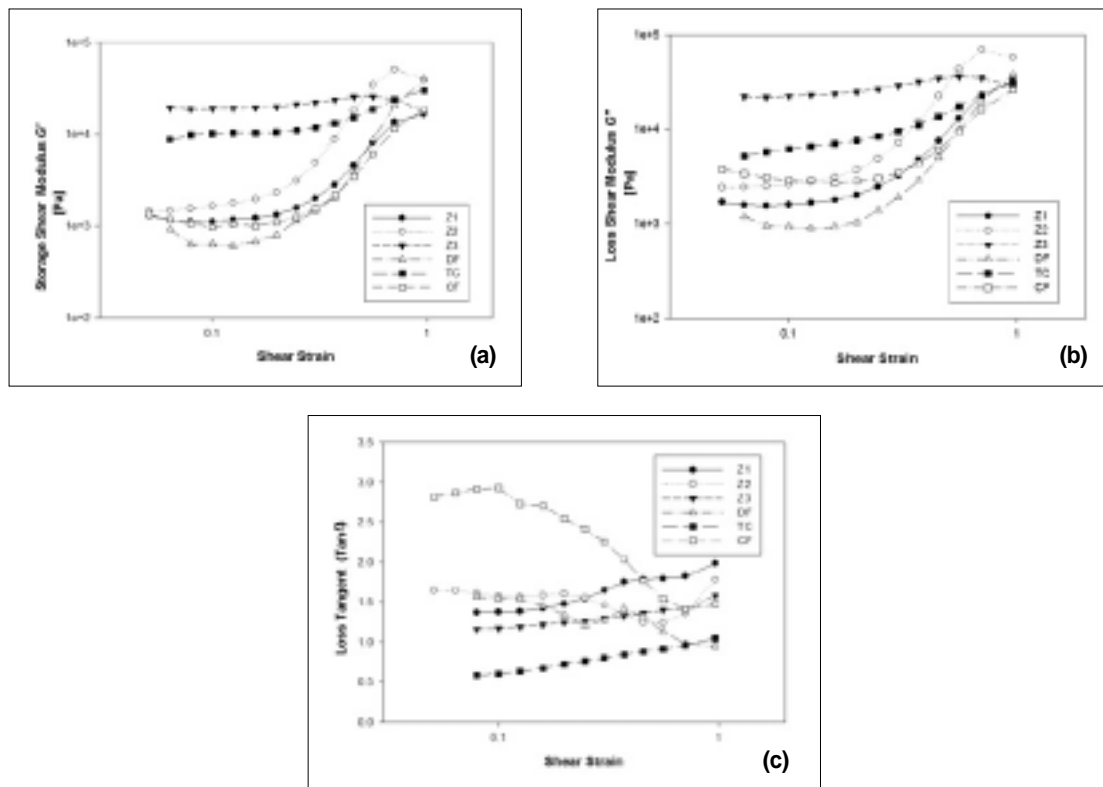


Figure 6. Rheological characteristics of composites as a function of strain at 25°C.

(a) Elastic (storage) shear modulus G' (b) Viscous (loss) shear modulus G'' (c) Loss tangent, $\tan \delta$

Table 3. Correlation analysis between the various rheological variables and the SRI

	G'	G''	$\tan \delta$	Spreaded diameter	Normal stress
SRI	0.71	0.94	- 0.37	0.48	0.71

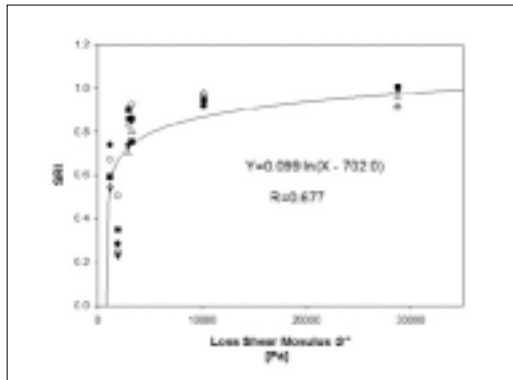


Figure 7. Logarithmic regression curve, $y=a\ln(x-x_0)$, fitted on the SRI of the composites as a function of viscous (loss) shear modulus G'' .

IV. 고 찰

본 연구에서 사용된, 형판으로 인기 후 최고점과 기저부의 단차 변화를 측정하는 방법은 복합레진의 slumping resistance를 비교적 빠르고 쉽게 정량화할 수 있는 방법이었다. 복합레진의 slumping 전 후 단면 영상을 얻기 위해 사용된 non-contact profilometer는 시편 표면을 손상하지 않으면서 좁고 가파른 홈을 scan 하는 것이 가능하였다. 본 연구는 동적회전전단실험과 같이 실험실에서 측정된 유변학적 측정 결과를 실제 임상에서 경험하는 조작성과 관련 지은 점에 그 의미가 크다.

SRI는 slumping 전, 후에 인기된 홈 깊이의 비율이다. 이렇게 고안된 실험에서 복합레진이 slump 되는 데에는 두 가지 주된 이유가 있다. 첫째, 재료 자체의 무게에 의해 최고점에서 홈을 매우며 아래로 흐를 수 있다. 둘째, 복합레진의 탄성에 의해 인기 후 변형된 상태에서 본래의 모양으로 일부 돌아갈 수 있다. 두 경우 모두에서, $H_s - L_s$ 는 감소하여 결과적으로 SRI가 작아진다. 복합레진의 점성은 흐름과 탄성회복에 저항하여 변형된 상태를 유지할 수 있게 한다. 그러므로 slumping resistance는 물질의 점탄성과 밀접한 관련이 있다. 탄성과 점성이 모두 큰 재료는 변형 자체가 쉽게 일어나지 않을 것이고 점성이 크고 탄성이 작은 물질은 변형된 상태를 더 잘 유지할 것이다. 점성은 낮는데 탄성이 큰 물질은 가해지는 힘에 저항하는 경향을 보이며 선형 점탄성 범위 내에서 변형되었을 때 변형된 상태에서 원래의 형태로 쉽게 회복될 것이고 점성과 탄성이 모두 작은 물질은 잘 흐를 것이다. Z350은 점성 및 탄성계수의 절대값 자체도 여섯 제품 중 가장 큰 값을 보였고 점성계수가 탄성계수보다 큰 값을 나타냈으며 따라서 SRI도 가장 큰 값을 가졌다 (Table 2, Figure 5). Z1은 Z2에 비해 낮은 탄성계

수 G' 와 점성계수 G'' 를 가져 인기된 형태가 덜 유지된다.

복합레진의 점성은 레진기질의 양과 조성, 무기질 filler의 양, 형태, 크기, 분포 그리고 silane처리, filler와 레진기질 계면의 상호작용, filler 입자간 상호작용에 의존한다^{10,13,14}. Filler 함량 증가, filler 표면의 불규칙성 증가, 레진기질에 glass fibers를 함입시켜 복합레진의 점성을 증가시킬 수 있다^{4,5,15}. Lee 등¹³의 연구는 점도가 filler volume 증가에 따라 지수함수적으로 증가하는 것과 filler volume이 같을 때, 더 작은 크기의 filler를 사용하면 점성이 증가함을 보였다. 작은 filler는 더 큰 표면적을 가져 filler-기질 상호작용을 증가시키는 것으로 보인다¹⁰. 일반적으로는 다른 모든 조건이 동일할 경우 같은 volume%에서는 입자의 모양이 구형 (spheres) < 격자 (grains) < 판상 (plates) < 막대형 (rods) 의 순으로 증가하는 것으로 알려져 있다. 또한 glass fiber와 같은 막대형 입자의 경우 길이/지름의 비율이 클수록 점도가 커진다^{5,9,10,13,15}.

제조사의 자료에 의하면, Z1과 Z2은 공히 0.01 - 3.5 μm 의 zirconium/silica filler를 가지나, Z2은 Z1의 TEGDMA보다 더 높은 점성을 가지는 UDMA와 Bis-EMA 단량체를 함유하고 있다 (Table 1). 그러므로 Z2이 Z1보다 높은 점성을 가질 것으로 예측할 수 있으며 본 연구의 결과와 일치한다 (Table 2). Z3은 Z2과 같은 단량체 기질로 구성되어 있으나, Z3은 20 nm silica nanoparticle과 0.6 - 1.4 μm 크기의 agglomerated nano-clusters를 함유한다. 동적전단실험에서 측정된 복소점도는 Z3이 Z2보다 9.8배 컸다. 나노미터 크기의 filler와 flocculated nano-clusters로 인해 입자간 상호작용이 증가되었기 때문으로 해석된다. 한편, squeeze test에서는 Z3에서 기록된 normal stress가 Z2에 비해 1.5배 정도 밖에 되지 않았다. 반면 DF는 가장 낮은 복소점도를 보였으나 normal stress 값은 Z2의 1.48배를 나타냈다. 따라서 수직적인 힘과 전단변형에 대한 반응은 복합레진에 따라 큰 차이가 있음을 알 수 있다.

복합레진의 점도를 비교하기 위해 기존에 주로 사용되었던 flow test는 복합레진에 일정한 수직 힘을 가하여 spread 되는 시편의 직경을 측정하는 것이다. 그러나 이러한 방법으로는 복합레진의 점성과 탄성성질을 구별할 수 없다. 또한 시편에 힘이 가해지면서 시편의 단면적이 점차 넓어지므로 실험 중 시편에 가해지는 압력이 변한다는 면에서 정확성이 부족하다. 이번 실험에서는 rheometer를 이용한 squeeze test도 시행하였는데 이러한 실험에서는 8 mm의 일정한 직경의 plate를 사용하여 일정 속도로 복합레진에 힘을 가하기 때문에 임상에서 정해진 크기의 기구로 복합레진을 적용하는 것을 더욱 잘 흉내낼 수 있다.

전단변형 시 복합레진의 전단응력은 주로 레진 기질 내 무기질 filler의 미끄러짐 또는 구름 (rolling)에 의한 마찰력

에 의해 유발된다. 그러나, squeezing 중 압력은 filler 입자 사이의 직접적인 충돌과 레진 단량체의 단방향성 변형으로 인한 압축에 대한 저항 때문이다^{10,16)}. 결론적으로, 전단변형에 대한 저항은 유사한 레진기질에서는 주로 filler technology의 영향을 받는다. 반면에 수직적 변형에 의해 생긴 응력은 같은 filler 조성에서 주로 레진 단량체의 영향을 받는다. 이것으로 Z2와 Z3에서 normal stress 값이 레진기질 구성성분이 다른 Z1보다 훨씬 큰 값을 나타내는 것을 설명할 수 있다. 반면, Z1, Z2의 복소점도는 나노 filler를 가진 Z3에 비해 훨씬 작다.

SRI 값은 Z3 > TC > CF > Z2 > DF > Z1 순으로 감소하여 동적전단실험에서 측정된 유변학적 결과와 관련성을 보였다 (전단탄성계수 G' ($R = 0.71$), 전단점성계수 G'' ($R = 0.94$)). 이는 SRI가 탄성과 같이 원래 형태를 회복하려는 성질, 그리고 점성과 같이 물질의 흐름에 저항하는 성질의 측정치라는 사실에 의해 예측할 수 있다. 복합레진의 탄성은 slumping에도 저항하지만 다른 한편으로는 알루미늄 몰드에 의한 imprint 후 변형 전의 원래 모양으로 회복하려는 성향을 복합레진에 제공하기도 한다. 반면 점성은 slumping에는 저항하나 imprint 후 원래의 모양으로 돌아가려는 성질이 없는 plastic한 성질을 부여해 SRI와 더 큰 상관계수를 보인 것으로 사료된다. Figure 8에서 보이는 바와 같이, 회귀분석의 결과 SRI는 G'' 과 비선형 logarithmic curve $y = a \ln(x-x_0)$ (y : SRI, x : 전단점성계수 G'' , a : 계수)에 부합되게 나타낼 수 있었다. 이것은 SRI가 점성계수가 증가함에 따라 빠르게 증가하여 점성이 높은 영역에서는 plateau에 도달하는 것을 보여준다.

복합레진 적용의 과정은 spatula 형태의 기구를 이용한 shearing, plugger를 이용한 누르고 다져 넣는 (packing) 동작, syringe-type의 용기에서 압출하는 동작, 수기구나 brush를 이용해서 훑치는 (wiping) 동작 등 많은 다양한 동작을 포함한다. 본 연구에서 행한 squeeze test는 진료실에서 복합레진을 다져 넣을 때의 저항을 비교하는데 적합하다. 동적회전전단실험은 교합면 형성 후 slumping resistance를 예측하는데 적용할 수 있다. CF는 특히 상대적으로 큰 loss tangent 값을 가지는데 (Table 2), 이와 관련하여 복소점도 값은 Z2와 비슷한 반면, normal stress는 Z1과 비슷한 정도로 낮은 값을 나타내는 것으로 보인다. 이러한 결과를 통해 CF이 임상에서 누르는 힘에 저항이 적어 와동 내에 잘 적용되면서, 교합면 조각 시에 쉽게 흘러내리지는 않을 것이라 예측할 수 있다.

손실탄젠트 $\tan \delta$ 와 SRI 간에는 상관관계를 보이지 않았다 ($R = -0.37$). 손실탄젠트 $\tan \delta$ 가 증가한다는 것은 탄성계수에 비해 점성계수가 상대적으로 증가하는 것이고, 이것은 대개 열로 소실되는 에너지가 저장되는 에너지보다 큰 상황을 나타낸다. 그러나 높은 $\tan \delta$ 값이 높은 점성을 나타

내는 것은 아니다. 유변학에서 $\tan \delta$ 는 물질 자체의 성질로서 점성과 탄성 사이의 상대적인 비를 나타내며 절대적인 값을 의미하는 것은 아니다.

복합레진은 온도가 증가하면 유체와 비슷한 거동을 보이며 그 점도가 지수함수적으로 감소한다^{10,13)}. 같은 이유로, SRI는 온도가 증가함에 따라서 감소한다. 진료실에서 syringe에서 막 나온 복합레진은 종종 단단하고 적용하기 어려운 경우가 있다. 그러나 따뜻한 구강 내에서 재료는 더 쉽게 흐르고 와동벽에 더 용이하게 적용된다. 본 연구에서 SRI는 25°C, 인가 3분 후에 측정되었고 둘 중 하나의 변수가 변해도 SRI는 변할 수 있다. 그러므로 SRI를 제시할 때 SRI (25°C, 3 min)와 같이 시간과 온도에 관한 언급이 필요하다¹⁷⁾.

후후 monomer의 종류와 비율, filler 함량, 모양과 크기와 같은 구성성분의 변화와 소량의 첨가제들이 SRI에 미치는 영향에 대하여 연구가 더 필요할 것으로 사료된다.

V. 결 론

본 연구는 여섯 종류의 다른 복합레진이 전단력과 수직 응력에 대한 반응에 차이가 있으며 이는 레진 단량체와 filler 조성의 차이에 의해 설명될 수 있음을 보여주었다. 수직적인 힘에 대한 반응은 조작성과 관련되어, 복합레진을 적용할 때 복합레진이 어느 정도의 힘에 어느 정도 spread 될지 예측할 수 있는 정보가 된다. 전단변형에 대한 반응은 복합레진의 slumping과 관련되었다.

이 연구는 또한 복합레진의 slumping resistance index (SRI)를 구하기 위하여 복합레진 paste에 남은 imprints를 측정하는 기법을 도입하였다. SRI는 특별한 임상상황에서 이상적인 조작성을 가진 재료를 선택하는 데에 유용한 정보로 활용할 수 있다. SRI는 재료에 따라 크게 차이가 있었으며 Z1 < DF < Z2 < CF < TC < Z3의 순서였다. Slumping resistance는 치과용 복합레진의 점탄성에 의해 결정되고, 전단점성계수 G'' 와 강한 연관성을 보였다.

참고문헌

1. Al-Sharaa KA, Watts DC. Stickiness prior to setting of some light cured resin composites. *Dent Mater* 19:182-187, 2003.
2. Lee IB, Son HH, Um CM. Rheological properties of flowable, conventional hybrid, and condensable composite resins. *Dent Mater* 19:298-307, 2003.
3. Craig RG, Powers JM. Restorative dental materials. 11th Ed. Mosby Co.; p91-98, 231-251, 2002.
4. Bayne SC, Thompson JY, Swift EJ, Stamatiades P, Wilkerson M. A characterization of first-generation flowable composites. *J Am Dent Assoc* 129:567-577, 1998.

5. Leinfelder KF, Bayne SC, Swift EJ. Packable composites: overview and technical considerations. *J Esthet Dent* 11:234-249, 1999.
6. Opdam NJM, Roeters JJM, Peters TCRB, Burgersdijk RCW, Kuijs RH. Consistency of resin composites for posterior use. *Dent Mater* 12:350-354, 1996.
7. Lee IB, Cho BH, Son HH, Um CM. The effect of consistency, specimen geometry and adhesion on the linear polymerization shrinkage measurement of light cured composites. *Dent Mater* 22:1071-1079, 2006.
8. Tyas MJ, Jones DW, Rizkalla AS. The evaluation of resin composite consistency. *Dent Mater* 14:424-428, 1998.
9. Barnes HA, Hutton JF, Walters K. An introduction to rheology. 1st edi. Elsevier Science Publishing Co. p64-73, 1989.
10. Rheology and its application. 1st edi. The Korean society of rheology. p3-103, 175-191, 2001.
11. Summitt JB, Robbins JW, Hilton TJ, Schwartz RS. Fundamentals of operative dentistry: A contemporary approach. 3rd Ed. Quintessence books. p319-323, 2006..
12. Jackson RD, Morgam M. The new posterior resins and a simplified placement technique. *JADA* 131:375-383, 2000.
13. Lee JH, Um CM, Lee IB. Rheological properties of resin composites according to variations in monomer and filler composition. *Dent Mater* 22(6):515-526, 2006.
14. Kim SW, Kim OY, Jang JS. Rheological properties of fumed silica filled Bis-GMA dispersions. *Polymer Eng and Sci* 38:1142-1148, 1998.
15. Leinfelder KF, Radz GM, Nash RW. A report on a new condensable composite resin. *Compendium* 19(3):230-237, 1998.
16. Lee IB, Cho BH, Son HH, Um CM. Rheological characterization of composites using a vertical oscillation rheometer. *Dent Mater* 23:425-432, 2006.
17. Lee IB, Chang J, Ferracane J. Slumping resistance and viscoelasticity prior to setting of dental composites. *Dent Mater*, in press, 2008.

국문초록

치과용 복합레진의 중합 전 slumping resistance와 점탄성

서희연 · 이인복*

서울대학교 치의학대학원 치과보존학교실

본 연구의 목적은 복합레진의 slumping resistance를 측정할 수 있는 방법을 개발하고, 그 유용성을 평가하기 위해 rheometer를 이용해 측정된 복합레진의 여러 유변학적 성질과 slumping resistance의 상호 관련성을 밝히고자 하였다.

상용되는 hybrid composites (Z100, Z250, DenFil, Tetric Ceram, ClearFil)와 nanofil composite (Z350)를 2 mm 두께의 디스크 모양의 시편으로 만들었다. 사각형의 단면을 가진 알루미늄 형판으로 레진 디스크를 눌러 표준화된 자국을 남겼다. 이것을 즉시 광중합하거나 (no-slump) 25°C 에서 3 분간 방치한 후에 광중합 하였다 (slumped). 흰 경석고로 광중합된 레진을 복제한 후 laser 3-D profilometer 로 표면의 단면 영상을 얻었다. Slumping 전 후 홈의 깊이의 비를 구해 slumping resistance index (SRI)라 정의하였다. 각 복합레진의 중합 전 전단 점탄성을 측정하기 위해 회전형 rheometer 를 이용하여 동적회전전단실험과 squeeze test를 시행하였다. 더불어 flow test를 시행하였다. 동적회전전단실험 및 압착실험의 결과와 SRI의 상호관련성을 조사하기 위해 상관분석을 하였다.

여섯 가지의 재료의 SRI 값에는 차이가 있었다 (Z100 < DenFil < Z250 < ClearFil < Tetric Ceram < Z350). SRI 는 전단 점성(손실)계수 G'' 와 가장 큰 양의 상관관계를 보였으며 Tan δ 는 SRI와 상관관계가 없었다. SRI는 수직 가압에 대한 저항 보다 전단흐름에 대한 저항과 관련성이 높았다.

본 연구에서 도입된 imprint method와 SRI는 복합레진이 slumping 되는 경향을 정량화하였으며 복합레진 조작성의 평가 방법으로 사용할 수 있었다.

주요어: Slumping resistance, 점탄성, 복합레진, 유변학, 조작성