

상아질 접착 후 저장기간에 따른 접착제의 접착력 변화

조영곤^{1*} · 반일환¹ · 유미경²

¹조선대학교 치과대학 치과보존학교실, ²전북대학교 치과대학 치과보존학교실

ABSTRACT

THE CHANGE OF ADAPTABILITY CHANGE IN ADHESIVE SYSTEMS TO DENTIN SUBSTRATE ACCORDING TO STORAGE TIME

Young-Gon Cho^{1*}, Il-Hwan Ban¹, Mi-Kyung Yu²

¹Department of Conservative Dentistry, College of Dentistry, Chosun University

²Department of Conservative Dentistry, School of Dentistry, Chonbuk National University

This study compared the microtensile bond strength (μ TBS) and microscopic change of two 2-step and two 1-step self-etching adhesives to dentin according to storage times in distilled water.

Occlusal dentin was exposed in 48 human molars. They were divided to four groups by different adhesives: SE Bond group (Clearfil SE Bond), AdheSE group (AdheSE), Adper group (Adper Prompt L-Pop), and Xeno group (Xeno III). Each group was stored in 37°C distilled water for 1, 15, and 30 days.

Resin-bonded specimens were sectioned into beams and subjected to μ TBS testing with a crosshead speed of 1 mm/minute. For SEM observation, one specimen was selected and sectioned in each group after each storage time. Resin-dentin interface was observed under FE-SEM.

In all storage times, mean μ TBS of SE group was significantly higher than those of other groups ($p < 0.05$). There was no significant difference between mean μ TBS of SE group and AdheSE group among all storage times, but significant difference between 1- and 30-day storage in mean μ TBS of Adper group and Xeno group ($p < 0.05$). For 1- and 15-day storage, all groups showed the close adaptation between resin-dentin interfaces. For 30-day storage, resin-dentin interfaces showed wide gap in Adper group and separate pattern in Xeno III group. [J Kor Acad Cons Dent 30(2):210-220, 2005]

Key words: Microtensile bond strength, Microscopic adaptability change, 2-step and 1-step self-etching adhesive, Storage time

- Received 2005. 1. 6, revised 2005. 2. 18, accepted 2005. 3. 5 -

I. 서 론

접착 수복재를 이용한 치아 결손부의 수복 시, 접착제의

사용에 관한 최근 경향은 단순화된 접착제를 사용하는 것이다. 자가 산부식 접착제 (self-etching adhesive)는 단순한 접착과정을 통하여 치질에 대한 접착을 완료한다. 이는 산부식 처리와 프라이밍을 동시에 수행한 후 접착제를 적용하는 2단계 (two step) 자가 산부식 접착제와 산부식 처리, 프라이밍 및 접착의 3과정을 1단계로 단축시킨 단일 (one step) 단계 자가 산부식 접착제로 분류된다. 이러한 자가 산부식 접착제는 기존의 3단계 접착제에 비해 접착과정을 감소시켰을 뿐만 아니라 total-etch 접착제의 사용과 관련된

* Corresponding author: Young-Gon Cho

Department of Conservative Dentistry,
College of Dentistry, Chosun University
421 Seosuk-dong, Dong-gu, Gwangju, Korea, 501-825
Tel: 82-62-220-3840, 3845 Fax: 82-62-232-9064
E-mail: ygcho@mail.chosun.ac.kr

술식 민감성과 술자에 의한 다양성 (variability)을 감소시켰다^{1,2)}.

자가 산부식 접착제를 상아질 표면에 적용하면 산성의 단량체에 의해 도말층과 하방의 광화된 상아질 면이 부분적으로 탈회된다³⁾. 탈회된 깊이는 접착제나 프라이머에 포함된 단량체의 산도에 따라 다르게 나타난다⁴⁾. 그 후, 접착레진은 용해된 도말층 (smear layer)과 함께 혼합물을 이루어 탈회된 상아질로 침투되어 혼화층 (hybrid layer)을 형성함으로써⁵⁾ 상아질과 접착제 간에 연속체를 이루게 된다⁶⁾.

복합레진 수복물의 장기간의 접착내구성은 접착계면에 있는 혼화층의 미세 기계적인 접착에 의존 된다⁷⁾. 만약 시간이 지나면서 혼화층의 접착이 약화되면 술후동통이나 복합레진 수복물의 변연변색, 이차우식증 및 탈락과 같은 임상적인 문제가 나타나게 된다. 현재 사용되고 있는 모든 접착제는 혼화층 내에 존재하는 10-50 nm의 기공 (porosities)을 완전히 밀폐시키지 못하고 있다⁸⁾. 이러한 나노미터 크기의 공간은 탈회된 상아질에 불완전한 레진의 침투나 접착제의 중합으로 인하여 발생되며, 여기에 세균산물과 상아세관액 등의 용액이 침투되면 접착계면에서 nanoleakage가 발생 된다^{9,10)}. 이는 혼화층 내의 교원섬유와 접착제를 가수분해 시켜¹¹⁾ 복합레진과 상아질 간의 접착을 저하시키는 원인으로 작용한다.

다수의 현미경적인 연구에서 nanoleakage는 모든 상아질 접착제의 혼화층 내에서 관찰되고 있다^{10,12-14)}. Nanoleakage에 관한 장기간의 저장효과에 관하여 Li 등¹⁵⁾은 total etch 접착제 (Single Bond, Stae)와 자가 산부식 접착제 (Clearfil SE Bond)를 장기간 (1일, 3, 6, 9, 12개월) 생리식염수에 저장하여 nanoleakage를 관찰한 결과 모든 접착제의 nanoleakage는 12개월의 저장기간 동안 점차 증가하였으며, 두 종류의 접착제 간에 nanoleakage 양상이 서로 다르게 나타났다고 보고하였다. Tay와 Pashley¹⁴⁾는 total etch 접착제와 자가 산부식 접착제로 접착된 상아질의 혼화층에서 접착층으로 연장된 water tree를 관찰하고, 이는 시간이 지나면서 레진 상아질 접착의 가수분해를 위한 통로로써 작용하여 상아질 접착제의 접착력을 저하시킬 것이라고 추정하였다.

또한 상아질에 대한 접착 저하는 장기간의 물 흡수 (water sorption)에 의한 접착레진의 가수분해에 의해 일어난다¹⁶⁾. 흔히 자가 산부식 접착제는 치면을 효과적으로 wetting하고 접착을 향상시키기 위해 친수성과 이온성의 기능 단량체를 사용한다¹⁷⁾. 자가 산부식 접착제에 포함된 이러한 단량체는 물을 흡수하여 중합된 레진 기질내로 물을 확산시켜 접착레진의 가수분해를 촉진한다^{13,18)}.

다양한 종류의 접착제는 초기에 상아질에 대한 높은 결합강도를 나타낸다^{2,16,19)}. 그러나 실험실 연구에서 장기간의 증류수 저장에 의한 가수분해의 결과로써 상아질에 대한 접착

제의 결합강도는 감소됨을 보여주고 있다. Hashimoto 등²⁰⁾은 상아질에 Scotchbond Multi-Purpose를 적용한 시편을 1일과 1년간 증류수에 저장하여 비교한 결과 1년간 저장한 시편은 1일간 저장한 시편보다 미세인장 결합강도가 67% 정도 감소하였으며, TEM 관찰에서는 콜라겐 섬유 형태학적인 변화가 나타났다고 보고하였다. Okuda 등²¹⁾은 2단계 total etch 접착제의 미세인장 결합강도는 6개월 후 1일간의 저장기간에 비해 50% 정도 감소하였다고 하였다. 또한 Okuda 등³⁾은 2단계 자가 산부식 접착제 (Clearfil Liner Bond 2와 Fluoro Bond)의 미세인장 결합강도는 저장기간 (1일, 3, 6, 9개월)이 길어질수록 점진적으로 감소하였고, TEM관찰에서도 혼화층 내에서는 침착이 점진적으로 증가되었다고 보고하고 혼화층 내에서의 가수분해는 점진적으로 증가하여 9개월과 같은 짧은 기간 후에도 낮은 결합강도를 초래할 수 있다고 하였다. 한편, 1년이나 그 이상의 장기간의 생체내 연구에서도 접착계면에서 복합레진과 상아질 접착의 저하와 콜라겐 섬유의 분해^{22,23)} 및 접착층에서 기공을 보여주고 있다²⁴⁾. 접착계면에서의 이러한 형태학적인 변화는 가수분해에 의해 접착레진이 용해됨으로써 일어난다.

이상과 같이 상아질에 접착제를 적용하여 제작된 시편을 증류수에 장기간 저장하여 결합강도나 전자 현미경으로 비교한 연구는 주로 total etch와 2단계 자가 산부식 접착제를 이용하여 이루어졌으나 단순한 접착과정을 이용하는 자가 산부식 접착제 간의 비교 연구는 부족한 실정이다. 따라서 본 연구에서는 상아질 표면에 2단계와 단일 단계 자가 산부식 접착제 (4종)를 적용하여 시편을 제작한 후, 증류수에 저장한 기간에 따른 4가지 접착제의 상아질에 대한 미세인장 결합강도와 접착계면의 변화를 상호 비교하였다.

Ⅱ. 실험재료 및 방법

1. 실험재료

치관부에 결함이나 수복물이 없는 최근에 발거된 상·하악 대구치 48개를 실험치아로 사용하였다.

본 실험에서는 2단계 자가 산부식 접착제 2종 (Clearfil SE Bond와 AdheSE)과 단일 단계 자가 산부식 접착제 2종 (Adper Prompt L-Pop과 Xeno III)을 사용하였고, 복합레진은 각각 동일 회사제품인 색조 A3의 Clearfil AP-X, Tetric Ceram, Filtek Supreme, Spectrum TPH를 사용하였다 (Table 1).

접착제와 복합레진의 중합을 위한 광조사기는 Spectrum 800 (Dentsply Caulk, Milford, DE, U.S.A.)을 사용하였고 500 mW/cm²의 광 강도를 이용하였다.

Table 1. The components and pH of two- and one-step self-etching adhesives and composites used

Adhesives	Components	pH	Composites	Manufacturers
Clearfil SE Bond	Primer: MDP, HEMA, water	1.9	Clearfil AP-X	Kuraray Medical Inc., Okayama, Japan
	DMA, initiator			
	Bond: MDP, HEMA, DMA, microfiller, initiator			
AdheSE	Primer: DMA, phosphonic acid acrylate, initiator	1.5	Tetric Ceram	Ivoclar Vivadent AG, Schann, Liechtenstein
	Bond: HEMA, DMA, silicone dioxide, initiator			
Adper Prompt L-Pop	Red blister: Methacrylated phosphoric ester, Bis-GMA, CQ, stabilizer	1.3	Filtek Supreme	3M ESPE Dental Products, St. Paul, MN, U.S.A.
	Yellow blister: water, HEMA, polyalkenoic acids, stabilizer			
Xeno III	Liquid A: HEMA, water, ethanol, BHT, nanofiller	1.0	Spectrum TPH	Dentsply DeTrey GmbH, Konstanz, Germany
	Liquid B: Pyro-EMA, PEM-F, UDMA, BHT, EPD, CQ			

MDP = 10-methacryloyloxydecyl dihydrogen phosphate, HEMA = 2 hydroxyethyl methacrylate, DMA = dimethacrylate, Bis-GMA = Bisphenol glycidyl methacrylate, CQ = camphoroquinone, Pyro-EMA = tetramethacryloxyethyl pyrophosphate, PEM-F = pentamethacryloxyethyl cyclophosphazene mono fluoride, UDMA = urethane dimethacrylate, BHT = 2,6-Di-tert-butyl-p hydroxyl toluene, EPD = p-dimethylamino ethyl benzoate.

2. 실험방법

(1) 군 분류와 복합레진의 축조

경석고를 혼합하여 C.B.C.병 (Complete Blood Count bottle: Sewon Yanghang, Busan, Korea)에 완전히 채운 후, 각 대구치의 치근을 백악법랑 경계부 하방까지 수직으로 매몰하여 치관부가 노출되도록 하였다. 경석고가 경화된 다음, Isomet Low Speed Saw (Buehler Ltd., Lake Bluff, IL, U.S.A.)를 이용하여 각 치관부를 교합면과 평행하게 절단하여 상아질을 노출하였다. 주수 하에서 상아질 표면을 600 grit의 silicone carbide (SiC) paper로 연마하여 균일한 도말층이 형성되도록 하고, 실온의 증류수에 보관하였다.

상아질 표면이 노출된 48개의 치아는 무작위로 12개씩 선택하여 사용된 접착제의 종류에 따라 4개의 군 (SE Bond 군, AdheSE 군, Adper 군, Xeno III 군)으로 분류하였다. 각 상아질 표면을 air-water 시린지로 깨끗이 세척하고 공기 시린지로 건조한 후, 제조사의 설명서에 따라 다

음과 같이 각 군의 접착제와 복합레진을 상아질 표면에 접착하였다. 48개의 치아 중 36개는 미세인장 결합강도를 측정하기 위해 사용하였고, 12개는 주사전자 현미경 (Scanning Electron Microscope; SEM) 관찰을 위해 사용하였다.

1) SE Bond 군

Clearfil SE Primer를 공급된 솔에 적셔 상아질 표면에 적용하고, 20초간 방치한 다음 공기 시린지로 건조하였다. 그 후 Clearfil SE Bond를 공급된 솔에 적셔 상아질 표면에 적용하고 공기 시린지로 가볍게 붙여 상아질 표면에 충분히 퍼지도록 한 다음, Spectrum 800으로 10초간 광조사하였다. Clearfil AP-X를 2 mm 두께로 축조하고 40초간 광조사하였다. 이러한 과정을 다시 반복하여 절단된 상아질 표면 위에 4 mm 두께의 복합레진이 접착되도록 하였다.

2) AdheSE 군

AdheSE Primer를 공급된 솔에 적셔 상아질 표면에 30

초 동안 적용한 다음, 공기 시린지로 강하게 건조하였다. 그 후 AdheSE Bond를 공급된 솔에 적셔 상아질 표면에 적용하고 공기 시린지로 가볍게 불어 상아질 표면에 충분히 퍼지도록 한 다음, 10초간 광조사하였다. 상아질 표면 위에 Tetric Ceram의 접착은 SE Bond 군과 같은 방법을 이용하였다.

3) Adper 군

제조사에 설명에 따라 Adper Prompt L-Pop 접착제를 혼합하여 공급된 applicator에 증등도의 압력을 가해 상아질 표면에 15초간 문지르면서 적용하였다. 공기 시린지로 접착제를 가볍게 불어 상아질 표면에 충분히 퍼지도록 한 후, 표면에 광택이 나면 10초간 광조사하였다. 상아질 표면 위에 Filtek Supreme의 접착은 SE Bond 군과 같은 방법을 이용하였다.

4) Xeno III 군

혼합용기에 Xeno III 용액 A와 B를 한 방울씩 분배하여 공급된 applicator로 약 5초간 혼합하였다. 제조사의 설명에 따라 공기 시린지를 이용하여 상아질 표면에 약간의 수분이 남아있도록 건조한 후, 충분한 양의 접착제를 적용하고 최소 20초 동안 기다렸다. 상아질 표면에서 접착제의 흐름성이 없어질 때까지 공기 시린지로 최소 2초간 가볍게 불어 균일하게 퍼지도록 하고, 10초간 광조사하였다. 상아질 표면 위에 Spectrum TPH의 접착은 SE Bond 군과 같은 방법을 이용하였다.

복합레진을 축조한 48개의 치아는 각 군당 4개씩 선택하여 증류수가 담겨진 용기에 집어넣고 37℃의 항온기에 각각 1일, 15일 및 30일 동안 저장하였다.

(2) 결합강도 측정을 위한 시편제작과 미세인장 결합강도의 측정

각 군당 3개의 치아를 각각 1일, 15일, 30일 후에 항온기에서 꺼내어 다음과 같은 과정을 통하여 시편을 제작하였다. 상아질 표면 위에 축조된 복합레진의 두께와 동일한 두께를 얻기 위하여 복합레진과 치아의 접착계면에서 치근측 4 mm 지점을 저속의 다이아몬드 wheel을 사용하여 수평으로 절단하였다. 치관의 협면이나 설면에 cyanoacrylate 접착제 (ALTECO Korea Inc., Pyungtaek City, Korea)를 적용하여 레진 블록에 접착하였다. 주수 하에서 Isomet Low Speed Saw를 이용하여 치아의 법랑질과 백악질을 제거한 후, 시편의 두께가 1 mm 간격으로 절단되도록 digital caliper (Mitutoyo Corp, Japan)를 조정하고 시편을 수직으로 절단하였다. 1 mm 두께의 시편을 홈이 파인 레진 블록에 cyanoacrylate 접착제로 접착한 후 레진 블록을 Isomet Low Speed Saw에 장착하고, 각 시편을 또 다시 1 mm 간격

의 수직 방향으로 절단하였다. 제작된 시편은 막대모양이었고, 상아질과 복합레진 계면에서의 단면적은 약 1.0 mm²였으며, 각 군 당 20개의 시편을 제작하여 미세인장 결합강도를 측정하였다.

결합강도를 측정하기 위하여 각 시편을 검사장치 (testing apparatus)에 위치시키고 시편의 양쪽 끝을 Zapit (Dental Ventures of America Inc., Lewis Court, CA, U.S.A)로 접착하였다. Universal testing machine (EZ test, Shimadzu Co., Kyoto, Japan)을 이용하여 상아질과 복합레진의 접착계면이 파절될 때까지 분당 1.0 mm의 crosshead speed로 인장하중을 가하였다.

(3) 주사전자 현미경 관찰을 위한 시편제작과 주사전자 현미경 관찰

각 군당 1개의 치아를 각각 1일, 15일, 30일 후에 항온기에서 꺼내어 상아질 표면 위에 축조된 복합레진의 두께와 동일한 두께를 얻기 위하여 복합레진과 치아의 접착계면에서 치근측 4 mm 지점을 저속의 다이아몬드 wheel을 사용하여 수평으로 절단하였다. 주수 하에서 Isomet Low Speed Saw를 이용하여 2 mm 간격으로 근원심 방향으로 수직 절단한 후, 각 군 당 2개의 시편을 선택하여 600 grit의 SiC paper로 연마하고 세척한 후 건조하였다. 주사전자 현미경적인 관찰을 위해 각 시편을 stub에 부착하고 12 KV 전압 하에서 1분간 700 Å의 두께로 백금으로 도금하였다. FE-SEM (S-4700: Hitachi High Technologies Co., Tokyo, Japan)을 사용하여 상아질과 복합레진의 계면을 1,000 배율로 관찰하였다.

(4) 통계분석

접착제의 종류와 증류수에 저장한 기간에 따른 상아질에 대한 미세인장 결합강도치의 유의성 검증은 통계분석 프로그램인 SPSS (ver. 10.1)에서 two-way ANOVA를 이용하여 비교 분석하였으며, 사후검정은 Tukey 검정을 이용하여 $p = 0.05$ 유의수준에서 분석하였다.

III. 실험결과

저장기간에 따른 각 군의 상아질에 대한 미세인장 결합강도의 평균치와 표준편차는 Table 2와 Figure 1에 나타내었다.

Two-way ANOVA에서 접착제의 종류와 저장기간에 따른 미세인장 결합강도는 각각 통계학적으로 유의한 차이를 나타내었다 ($p < 0.05$). 그러나 접착제의 종류와 저장기간에 따른 미세인장 결합강도 간에는 상호작용이 없는 것으로 나타났다 ($p = 0.436$).

저장기간 1일에서 상아질에 대한 각 군의 미세인장 결합

Table 2. Mean microtensile bond strengths (MPa) of each group to dentin according to storage times in distilled water

Group	uTBS (mean \pm S.D.)			No. of Specimens
	1 day	15 days	30 days	
SE Bond	31.37 \pm 4.32 ^a	31.32 \pm 5.54 ^a	28.65 \pm 5.34 ^a	20
AdheSE	20.31 \pm 8.43 ^b	18.00 \pm 6.72 ^b	17.64 \pm 5.35 ^{b,c}	20
Adper	18.64 \pm 5.47 ^b	15.20 \pm 4.89 ^{b,c}	13.99 \pm 7.20 ^{c,d}	20
Xeno III	21.80 \pm 6.41 ^b	20.58 \pm 8.29 ^b	14.96 \pm 5.39 ^c	20

Superscripts of the other letter indicate values of statistical significant difference by Tukey test ($p < 0.05$).

S.D.: Standard Deviation

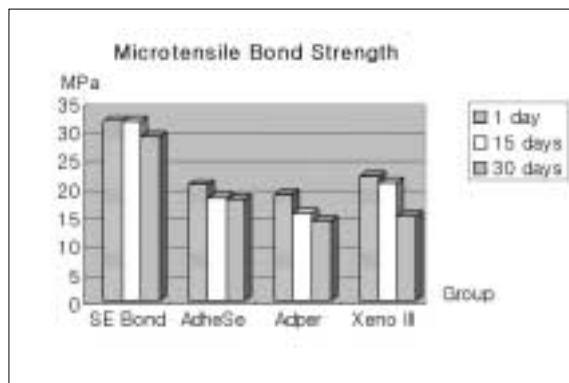


Figure 1. Histogram showing microtensile bond strengths for each group to dentin according to storage times in distilled water.

강도는 SE Bond 군에서 31.37 ± 4.32 MPa, AdheSE 군에서 20.31 ± 8.43 MPa, Adper 군에서 18.64 ± 5.47 MPa, Xeno III 군에서 21.80 ± 6.41 MPa를 나타내어 SE Bond 군이 다른 군보다 통계학적으로 가장 높게 나타났다 ($p < 0.05$, Table 2, Figure 1).

저장기간 15일에서 상아질에 대한 각 군의 미세인장 결합 강도는 SE Bond 군에서 31.32 ± 5.54 MPa, AdheSE 군에서 18.00 ± 6.72 MPa, Adper 군에서 15.20 ± 4.89 MPa, Xeno III 군에서 20.58 ± 8.29 MPa를 나타내어 SE Bond 군이 다른 군보다 통계학적으로 가장 높게 나타났다 ($p < 0.05$, Table 2, Figure 1).

저장기간 30일에서 상아질에 대한 각 군의 미세인장 결합 강도는 SE Bond 군에서 28.65 ± 5.34 MPa, AdheSE 군에서 17.64 ± 5.35 MPa, Adper 군에서 13.99 ± 7.20 MPa, Xeno III 군에서 14.96 ± 5.39 MPa를 나타내어 SE Bond 군이 다른 군보다 통계학적으로 가장 높게 나타났다 ($p < 0.05$, Table 2, Figure 1).

SE Bond 군과 AdheSE 군의 미세인장 결합강도는 저장 기간 1일, 15일, 30일 간에 통계학적인 유의차를 나타내지 않았다 (Table 2). Adper 군과 Xeno III 군의 미세인장 결합강도는 저장기간 1일과 15일 간에 통계학적인 유의차를 나타내지 않았으나, 저장기간 1일과 30일 간에 통계학적으로 유의한 차이를 나타내었다 ($p < 0.05$, Table 2).

주사전자 현미경 관찰에서 SE Bond 군은 저장기간 1일, 15일 및 30일 모두에서 상아질과 복합레진 간에 긴밀한 접착을 나타내었다 (Figure 2a, 3a, 4a). 저장기간 1일과 15일에서 AdheSE 군, Adper 군, Xeno III 군은 모두 상아질과 복합레진 간에 긴밀한 접착을 나타내었다 (Figure 2b-2d, 3b-3d). 저장기간 30일에서는 AdheSE 군은 상아질과 복합레진의 계면에서 미약한 간극이 관찰되었으며 (Figure 4b), Adper 군은 상아질과 복합레진 계면에서 넓은 간극을 보여주었고 (Figure 5a), Xeno III 군은 복합레진과 접착층간에 분리된 양상을 나타내었다 (Figure 5b).

IV. 총괄 및 고찰

물성이 우수한 상아질 접착제는 중합된 후 높은 결합강도를 제공하고 오랫동안 결합력이 지속되어야 한다¹⁶⁾. 상아질에 대한 접착제의 결합강도 검사는 일반적으로 시편을 제작한 후 24시간에 이루어지며, 이는 임상가가 접착제를 선택하는 기준으로서 흔히 활용되고 있다⁵⁾. 그러나 어떤 접착제는 24시간 후의 측정에서 높은 결합강도를 나타내지만 장기간의 결과에서는 낮게 나타날 수 있다^{20,21,25,26)}. 따라서 접착제와 상아질에 대한 장기간의 접착내구성을 평가하는 것은 아주 중요한 일이다. 본 연구에서는 시간의 경과에 따른 결합강도와 현미경적인 소견의 변화를 비교하기 위하여, 2단계와 단일 단계 자가 산부식 접착제를 각각 2종씩 상아질에 접착시킨 시편을 제작하여 1일, 15일, 30일 동안 증류수에 저장한 후 미세인장 결합강도와 주사전자 현미경적 평가를 시행하였다.

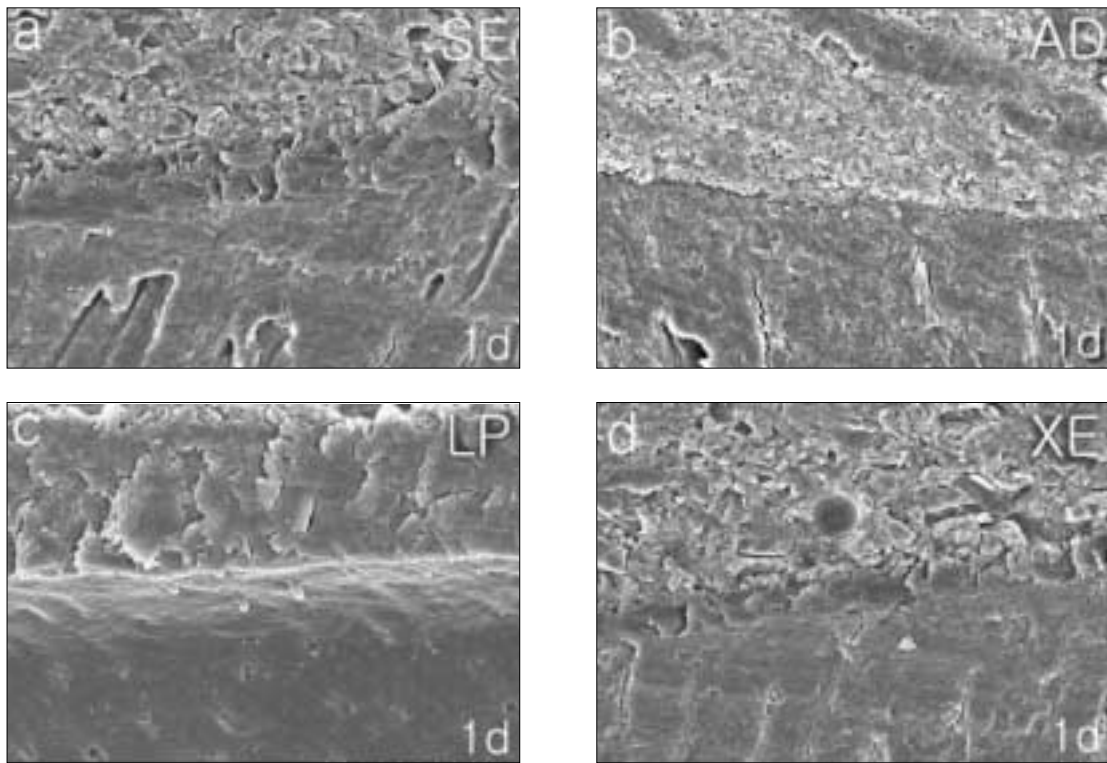


Figure 2. SEM photographs showing the close adaptation of dentin-resin interface produced by Clearfil SE Bond (SE), AdheSE (AD), Adper Prompt L-Pop (LP), and Xeno III (XE) after 1-day distilled water storage ($\times 1000$).

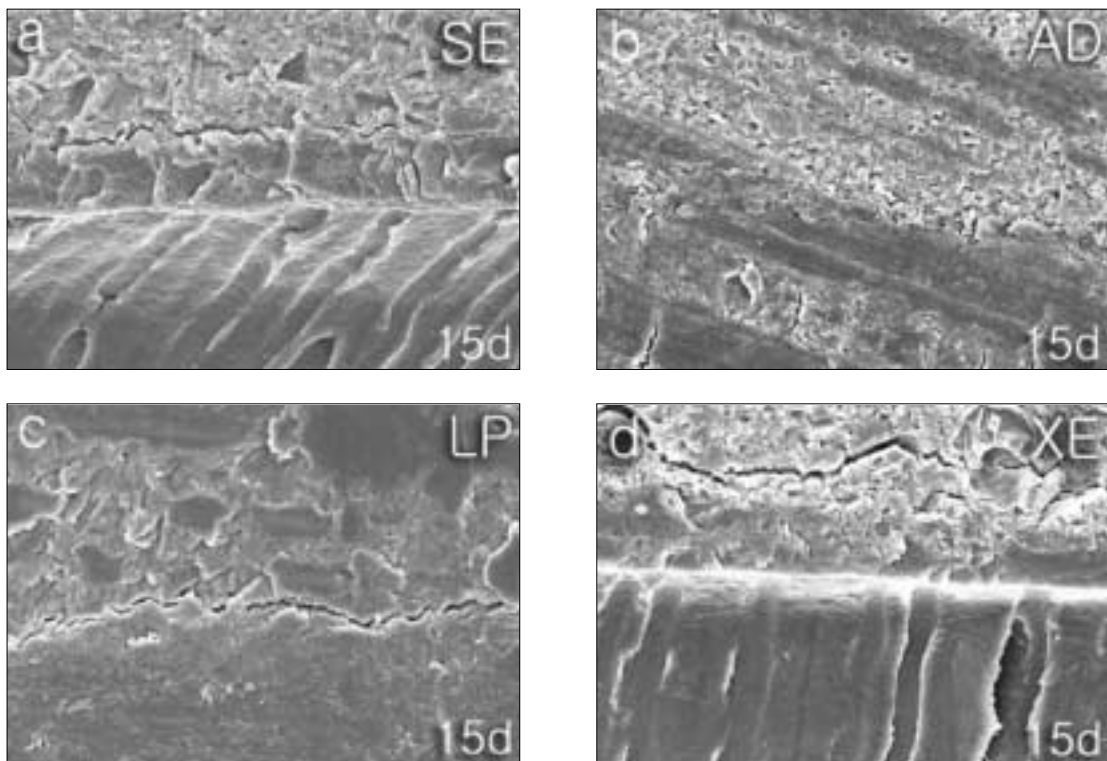


Figure 3. SEM photographs showing the close adaptation of dentin-resin interface produced by Clearfil SE Bond (SE), AdheSE (AD), Adper Prompt L-Pop (LP), and Xeno III (XE) after 15-day distilled water storage ($\times 1000$).

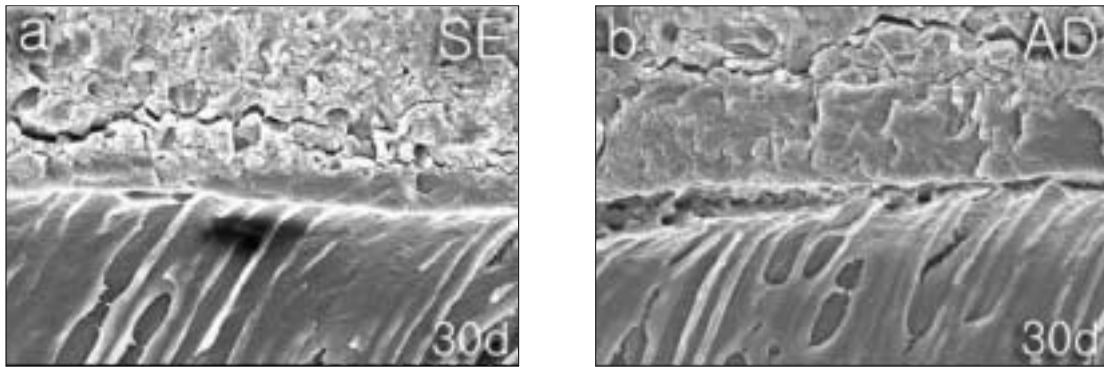


Figure 4. SEM photographs showing the close adaptation of dentin-resin interface produced by Clearfil SE Bond (SE) and tiny gap between dentin and resin interface produced by AdheSE (AD) after 30-day distilled water storage ($\times 1000$).

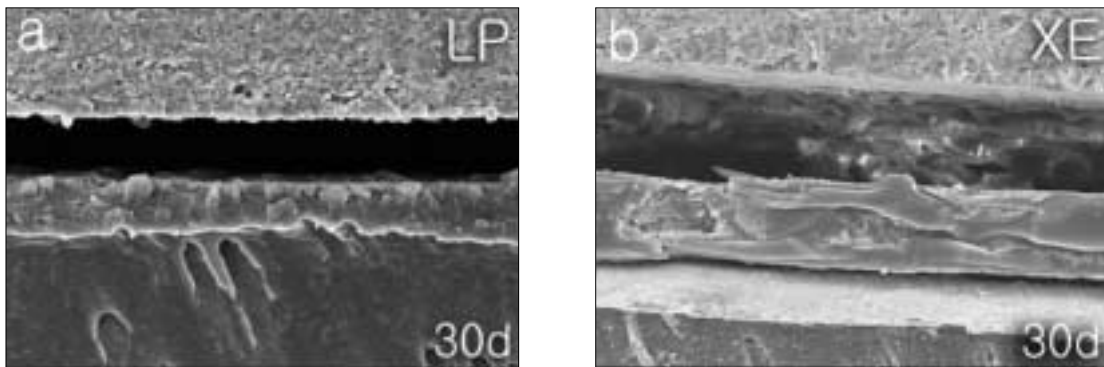


Figure 5. SEM photographs showing wide gap between the dentin-resin interface produced by Adper Prompt L-Pop (LP), and separate pattern between the interface of resin and adhesive layer produced by Xeno III (XE) after 30-day distilled water storage ($\times 1000$).

Total etch 접착제의 인산에 의한 산부식 처리는 상아질에 깊은 탈회면을 형성하므로 그 후에 적용되는 접착레진은 탈회된 깊이만큼 침투되지 못한다^{19,27}. 이러한 차이로 인하여 시간이 지나면서 노출된 교원섬유는 분해되고, 또한 접착제의 물 흡수로 인하여 상아질과 접착제 계면에서의 접착력은 저하 된다¹⁶. 그러나 자가 산부식 접착제는 상아질의 탈회와 접착레진의 침투가 동시에 이루어지므로 탈회와 침투의 깊이 차이로 인해 교원섬유가 노출될 가능성은 극히 적다²⁸. 따라서 자가 산부식 접착제의 장기간의 접착력 저하는 물에 의한 가수분해의 결과로 고려되고 있다. 자가 산부식 접착제는 성분 중에 물을 반드시 포함하고 있으며, 이는 상아질의 효과적인 탈회를 위해 필요한 수소이온을 발생 시킨다⁶. 접착제를 적용한 후 물을 완전히 제거하는 것이 바람직하지만 HEMA, 산성 단량체 및 상아질에서 용해된 칼슘과 인산염 이온으로 인해 물의 증발력이 낮아져 물을 완전히 제거하기가 어렵게 된다¹⁷. 접착제에 남아있는 물은 혼

화층과 접착층 내에서 불완전하게 중합된 국소적인 부위를 남기게 되고²⁹, 또한 접착제에 포함된 HEMA와 같은 성분이 상아질에 hydrogel을 형성하여 물이나 분자의 이동을 허용하게 된다^{17,29}. 이와 같이 잔존한 물이나 hydrogel은 시간이 지남에 따라 점점 확산되어 nanoleakage를 위한 통로로 작용하여²⁰ 상아질과 접착제 계면의 접착력을 저하시킨다.

본 연구에서 SE Bond 군은 저장기간 1일, 15일 및 30일 모두에서 다른 군보다 가장 높은 미세인장 결합강도를 나타내어 통계학적으로 유의한 차이를 나타내었으나 ($p < 0.05$) AdheSE 군, Adper 군, Xeno III 군의 미세인장 결합강도 간에는 통계학적으로 유의한 차이를 나타내지 않았다 (Table 2, Figure 1). 이러한 결과는 Toledano 등³⁰의 연구에서 상아질에 대한 Clearfil SE Bond의 미세인장 결합강도가 단일 단계 자가 산부식 접착제보다 통계학적으로 높게 나타났다고 보고한 결과와 비슷하게 나타났다. 본 연구에서 SE Bond군이 다른 군에 비해 높은 결합강도를 나타

낸 이유는 매우 친수성이고 상아질의 칼슘이온과 결합되는 hydroxyl group을 갖는 MDP 때문³⁰⁾으로 생각된다.

Chersoni 등¹⁾은 *in vivo* 연구에서 치관삭제 후 단일 단계 자가 산부식 접착제 (Adper Prompt L-Pop과 Xeno III)를 적용한 접착면에서 상아세관 액의 침투결과로써 큰 수포 (water blisters)가 관찰되었으나 2단계 자가 산부식 프라이머 (UniFilBond)를 적용한 접착면에서는 수포가 관찰되지 않았으며, 또한 실험실 연구의 저항역수 (fluid conductance) 측정에서도 단일 단계 자가 산부식 접착제를 적용한 상아질의 저항역수가 도말층으로 덮힌 상아질보다 크게 나타났으나 2단계 자가 산부식 접착제는 뚜렷이 낮게 나타나 단일 단계 접착제가 용액에 의해 쉽게 침투된다는 사실을 보고하였다. 이러한 결과는 본 연구에서 SE Bond 군이 Adper 군과 Xeno III 군보다 높게 나타난 이유를 설명할 수 있을 것으로 생각된다.

본 연구에서 SE Bond 군과 AdheSE 군의 미세인장 결합강도는 각각 저장기간 1일, 15일, 30일간에 통계학적인 유의차를 나타내지 않았다 (Table 2, Figure 1). 이는 증류수에 저장한 기간 (6개월)에 따른 2단계 자가 산부식 접착제와 상아질의 전단 결합강도에 관한 내구성을 비교한 연구에서 상아질에 대한 결합강도는 저장기간에 따라 통계학적으로 유의한 차이가 없다고 보고한 Pigmenta 등¹⁹⁾과 Konno 등³¹⁾의 연구결과와 유사하였다.

Hashimoto 등³²⁾은 단일 단계 자가 산부식 접착제를 적용한 시편의 상아질에 대한 미세인장 결합강도는 1일간 증류수에 저장한 군에 비해 12개월간 저장한 군에서 22-48% 감소하였다고 보고하였다. Tay 등²⁸⁾은 단일 단계 자가 산부식 접착제와 상아질 계면에 대한 TEM 연구에서 혼화층 내에 망상 형태와 혼화층과 접착층 내에 점 형태 (spotted pattern)의 2가지 형태의 nanoleakage를 관찰하고, 망상 형태는 불완전한 물의 제거 부위를, 점 형태는 접착제와 혼화층에 있는 투과성 부위를 나타내는 것 같다고 하였다¹⁷⁾. 또한 Tay와 Pashley¹⁴⁾는 단일 단계 자가 산부식 접착제에서의 접착계면을 따라 발생된 water tree는 불완전한 물의 제거의 부위를 나타내며, 이는 시간이 경과되면서 복합레진과 상아질 접착의 가수분해를 위한 통로로 작용할 것이라고 보고하였다. 본 연구에서 Adper 군과 Xeno III 군의 미세인장 결합강도는 각각 저장기간 1일과 15일 간에 통계학적인 유의차를 나타내지 않았으나, 저장기간 1일과 30일 간에 통계학적으로 유의한 차이를 나타내었다 ($p < 0.05$). 이러한 결과는 단일 단계 자가 산부식 접착제의 물에 대한 투과성과 물의 불완전한 제거로 인해 30일 후에 접착제가 가수분해 되면서 결합강도가 감소되었을 것으로 사료된다. 한편 Asmussen과 Peutzfeldt³³⁾는 단일 단계 자가 산부식 접착제 (Prompt L-Pop)를 상아질에 적용하여 복합레진을 접착한 후 증류수에 1일과 1년간 보관하여 전단 결합강도를

비교한 결과 1일과 1년 후의 결합강도는 통계학적으로 차이가 없다고 보고하여 본 연구의 결과와는 다르게 나타났다.

본 연구의 주사전자 현미경적인 관찰에서 저장기간 1일과 15일의 모든 군은 상아질과 복합레진 간에 긴밀한 접착을 나타내었다 (Figure 2, 3). 이러한 결과는 미세인장 결합강도에서 모든 군이 1일과 15일간의 저장기간에서 통계학적으로 유의한 차이를 나타내지 않는 결과를 현미경적으로 확인시켜 주었다.

저장기간 30일의 현미경 관찰에서 SE Bond 군과 AdheSE 군은 상아질과 복합레진 계면에서 각각 긴밀한 접착과 미약한 간극을 나타내었으나 (Figure 4), Adper 군은 상아질과 복합레진 계면에서 넓은 간극을 나타내었고 Xeno III군은 복합레진과 접착층 간에 분리된 양상을 보여주었다 (Figure 5). Armstrong 등³⁴⁾은 Clearfil SE Bond와 Prompt L-Pop 접착제로 접착된 상아질에 대한 접착내구성을 평가하기 위하여 1, 6, 15개월간 증류수에 보관한 후 미세인장 강도 측정하였는데 Prompt L-Pop은 시편 준비시 65개 중 58개가 실패하여 결합강도를 측정할 수 없었다고 하였다. 이는 본 연구의 저장기간 30일의 Adper 군에서 상아질과 복합레진 계면에서 관찰된 넓은 간극을 간접적으로 설명할 수 있을 것이다.

Tay 등³⁵⁾은 단일 단계 자가 산부식 접착제와 3단계 접착제를 수분이 함유된 (hydrated) 상아질에 적용한 후 광중합 복합레진의 지연중합에 대한 미세인장 결합강도를 비교하였다. 이러한 상아질에서 3단계 접착제의 결합강도는 지연 광중합에 영향을 주지 않았으나 모든 단일 단계 자가 산부식 접착제의 결합강도는 뚜렷이 저하되었다. 또한 TEM 시편에서 복합레진과 상아질 계면에서 큰 기포와 레진 구 (globules) 그리고 접착층과 복합레진 간에 분리된 부위를 관찰하고 이러한 결과는 단일 단계 자가 산부식 접착제가 투과막 (permeable membrane)으로 작용하였기 때문이라고 설명하였다. 이는 본 연구의 저장기간 30일의 Xeno III 군에서 복합레진과 접착층 간에 분리된 양상을 보여준 조건과 일치하였다.

프라이머를 적용한 상아질에 복합레진을 결합시키기 위하여 중간에 접착레진 층을 사용하는 2단계 자가 산부식 접착제와 달리 단일 단계 자가 산부식 접착제는 상아질과 접착시 미 중합된 이온성 레진 단량체와 복합레진과 직접 접촉하므로¹⁷⁾ 장기간의 접착내구성에 대한 결과는 다르게 나타날 수 있다. 또한 본 연구에서 사용된 접착제의 pH는 각각 다르다. 본 연구에서 사용된 2단계 자가 산부식 접착제인 Clearfil SE Bond와 AdheSE의 pH는 각각 1.9와 1.5이며, 단일 단계 자가 산부식 접착제인 Adper Prompt L-Pop과 Xeno III의 pH는 각각 1.3과 1.0으로서 단일 단계 접착제는 2단계 자가 산부식 접착제에 비해 낮은 pH를 갖

는다 (Table 1). 이와 같이 낮은 pH로 인하여 본 연구에서 사용된 단일 단계 자가 산부식 접착제의 상아질에 대한 부식효과는 2단계 자가 산부식 접착제 보다 강하게 나타나 인산을 이용한 경우와 유사한 상아질의 탈회를 일으킬 수 있다. 따라서 단일 단계 자가 산부식 접착제는 2단계 자가 산부식 접착제에 비해 노출된 교원섬유가 존재할 가능성이 높을 것으로 추측된다. 이러한 현상이 30일 간의 접착내구성에 영향을 미칠 수 있을 것으로 예상되며, 이에 대한 연구가 더욱 진행되어야 할 것으로 사료된다. 또한 단일 단계 자가 산부식 접착제는 물에 투과하는 성질을 가지고 있고, 접착제 성분에 포함된 물의 불완전한 제거로 인하여 30일의 저장기간에서 증류수에 의한 가수분해의 결과로 넓은 간극이 발생되었을 것으로 생각된다.

본 연구를 종합하여 보면 증류수에 저장한 기간 (1일, 15일, 30일)에 따른 2단계와 단일 단계 자가 산부식 접착제의 결합강도와 주사전자 현미경적인 소견은 서로 다르게 나타났다. 2단계 자가 산부식 접착제는 1일에서 30일의 저장기간 동안 결합강도가 점차적으로 감소하였지만 통계학적으로 유의한 차이를 나타내지 않았고, 상아질과 접착제 간에 긴밀한 접착관계를 보였다. 반면에 단일 단계 자가 산부식 접착제는 1일의 저장기간에 비해 30일의 저장기간에서 통계학적인 결합강도의 감소를 나타내었으며, 상아질과 접착제 간에 넓은 간극이 관찰되었다. 따라서 본 연구에서 나타난 두 종류의 30일 동안의 접착내구성은 2단계 자가 산부식 접착제가 단일 단계 자가 산부식 접착제보다 우수한 것으로 나타났다.

V. 결 론

본 연구는 상아질에 2단계와 단일 단계 자가 산부식 접착제를 적용하여 복합레진을 접착한 후 저장기간에 따른 미세인장 결합강도와 접착계면의 변화를 상호 비교하기 위하여 시행하였다.

발거된 상·하악 대구치 48개의 교합면측 상아질을 노출시켜 12개씩 4개의 군으로 분류하였다. 사용된 접착제의 종류에 따라 SE Bond 군 (Clearfil SE Bond), AdheSE 군 (AdheSE), Adper 군 (Adper Prompt L-Pop), Xeno III 군 (Xeno III)으로 분류하여 접착제를 적용한 후, 동일 회사의 복합레진을 4 mm 두께로 접착시켰다. 각 군당 4개의 치아를 선택하여 증류수가 담겨진 용기에 집어넣고 37°C의 항온기에 각각 1일, 15일, 30일 동안 저장하였다.

미세인장 결합강도의 측정을 위해 각 군당 3개의 치아를 각각 1일, 15일, 30일 후에 항온기에서 꺼내어 Isomet Low Speed Saw를 이용하여 상아질과 복합레진 계면의 단면적이 약 1.0 mm²의 시편을 제작하였다. Universal test-machine을 이용하여 각 시편의 복합레진과 상아질의

접착계면이 파절될 때까지 분당 1.0 mm의 crosshead speed를 가하여 미세인장 결합강도를 측정하였다.

주사전자 현미경 관찰을 위해 각 군당 1개의 치아를 각각 1일, 15일, 30일 후에 항온기에서 꺼내어 2 mm 두께의 시편을 제작하였다. 각 군 당 2개의 시편을 선택하여 주사전자 현미경 하에서 복합레진과 상아질 계면을 고배율로 관찰하였다.

접착제의 종류와 저장기간에 따른 상아질에 대한 미세인장 결합강도의 유의성 검증은 two-way ANOVA를 이용하여 비교 분석하였으며, 사후검정은 Tukey 검정을 이용하여 $p = 0.05$ 유의수준에서 분석하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

1. 저장기간 1일, 15일, 30일 모두에서 SE Bond 군은 다른 군에 비해 통계학적으로 높은 미세인장 결합강도를 나타내었으며 ($p < 0.05$), AdheSE 군, Adper 군, Xeno III 군의 미세인장 결합강도 간에는 통계학적으로 유의한 차이를 나타내지 않았다.
2. SE Bond 군과 AdheSE 군의 미세인장 결합강도는 저장기간 1일, 15일, 30일 간에 통계학적인 유의차를 나타내지 않았다.
3. Adper 군과 Xeno III 군의 미세인장 결합강도는 저장기간 1일과 15일 간에 통계학적인 유의차를 나타내지 않았으나, 저장기간 1일과 30일 간에 통계학적으로 유의한 차이를 나타내었다 ($p < 0.05$).
4. 저장기간 1일과 15일에서 SE Bond 군, AdheSE 군, Adper 군, Xeno III 군은 모두 상아질과 복합레진 간에 긴밀한 접착을 나타내었다.
5. 저장기간 30일에서 SE Bond 군과 AdheSE 군은 상아질과 복합레진 계면에서 각각 긴밀한 접착과 미약한 간극을 나타내었으며, Adper 군은 상아질과 복합레진 계면에서 넓은 간극을 보여주었고, Xeno III 군은 복합레진과 접착층간에 분리된 양상을 나타내었다.

결론적으로, 2 단계 자가 산부식 접착제는 30일간의 증류수에 저장한 경우에서 단일 단계자가 산부식 접착제보다 안정적인 접착력을 제공하였다.

참고문헌

1. Chersoni S, Suppa P, Grandini S, Goracci C, Monticelli F, Yiu C, Huang C, Prati C, Breschi L, Ferrari M, Pashley DH, Tay FR. *In vivo* and *in vitro* permeability of one-step self-etch adhesives. *J Dent Res* 83:459-464, 2004.
2. Sattabanasuk V, Shimada Y, Tagami J. The bond of resin to different dentin surface characteristics. *Oper Dent* 29:333-341, 2004.
3. Okuda M, Pereira PNR, Nakajima M, Tagami J, Pashley DH. Long-term durability of resin dentin interface: Nanoleakage vs microtensile bond strength.

- Oper Dent* 27:289-296, 2002.
4. Tay FR, Pashley DH, King NM, Carvalho RM, Tsai J, Lai SCN, Marquezini Jr L. Aggressiveness of self-etch adhesives on unground enamel. *Oper Dent* 29:309-316, 2004.
5. Armstrong SR, Keller JC, Boyer DB. The influence of water storage and C-factor on the dentin-resin composite microtensile bond strength and debond pathway utilizing a filled and unfilled adhesive resin. *Dent Mater* 17:268-276, 2001.
6. Chiba Y, Miyazaki M, Rikuta A, Moore BK. Influence of environmental conditions on dentin bond strengths of one-application adhesive systems. *Oper Dent* 29:554-559, 2004.
7. Pioch T, Staehle HJ, Duschner H, Godoy FG. Nanoleakage at the composite-dentin interface: A review. *Am J Dent* 14:252-258, 2001.
8. Sano H, Yoshiyama M, Ebisu S, Burrow MF, Takatsu T, Ciucchi B, Carvalho R, Pashley DH. Comparative SEM and TEM observations of nanoleakage within the hybrid layer. *Oper Dent* 20:160-167, 1995.
9. Guzman-Armstrong S, Armstrong SR, Qian F. Relationship between nano-leakage and microtensile bond strength at the resin-dentin interface. *Oper Dent* 26:60-66, 2003.
10. Li HP, Burrow MF, Tyas MJ. The effect of thermocycling regimens on the nanoleakage of dentin bonding systems. *Dent Mater* 18:189-196, 2002.
11. Yamauti M, Hashimoto M, Sano H, Ohno S, Carvalho RM, Kaga M, Tagami J, Oguchi H, Kubota M. Degradation of resin-dentin bonds using NaOCl storage. *Dent Mater* 19:399-405, 2003.
12. Pereira PNR, Okuda M, Nakajima M, Sano H, Tagami J, Pashley DH. Relationship between bond strengths and nanoleakage: evaluation of a new assessment method. *Am J Dent* 14:100-104, 2001.
13. Tay FR, Hashimoto M, Pashley DH, Peters MC, Lai SCN, Yiu CKY, Cheong C. Aging affects two modes of nanoleakage expression in bonded dentin. *J Dent Res* 82:537-541, 2003.
14. Tay F, Pashley DH. Water treeing-A potential mechanism for degradation of dentin adhesives. *Am J Dent* 16:6-12, 2003.
15. Li HP, Burrow MF, Tyas MJ. The effect of long-term storage on nano-leakage. *Oper Dent* 26:609-616, 2001.
16. Giannini M, Seixas CAM, Reis AF, Pimenta LAF. Six-month storage-time evaluation of one-bottle adhesive systems to dentin. *J Esth Rest Dent* 15:43-49, 2003.
17. Tay FR, Pashley DH, Peters MC. Adhesive permeability affects composite coupling to dentin treated with a self-etch adhesive. *Oper Dent* 28:610-621, 2003.
18. Yiu CK, King NM, Pashley DH, Suh BI, Carvalho RM, Carrilho MR, Tay FR. Effect of resin hydrophilicity and water storage on resin strength. *Biomaterials* 25: 5789-5796, 2004.
19. Pimenta LAF, Amaral CM, Bredrane de Castro AKB, Ritter AV. Stability of dentin bond strengths using different bonding techniques after 12 months: Total-etch, deproteinization and self-etching. *Oper Dent* 29:592-598, 2004.
20. Hashimoto M, Ohno H, Sano H, Kaga M, Oguchi H. *In vitro* degradation of resin-dentin bonds analyzed by microtensile bond test, scanning and transmission electron microscopy. *Biomaterials* 24:3795-3803, 2003.
21. Okuda M, Pereira PNR, Nakajima M, Tagami J. Relationship between nanoleakage and long-term durability of dentin bonds. *Oper Dent* 26:482-490, 2001.
22. Hashimoto M, Ohno H, Kaga M, Endo K, Sano H, Oguchi H. *In vivo* degradation of resin-dentin bonds in humans over 1 to 3 years. *J Dent Res* 79:1385-1391, 2000.
23. Hashimoto M, Ohno H, Kaga M, Endo K, Sano H, Oguchi H. Resin-tooth adhesive interfaces after long-term function. *Am J Dent* 14:211-215, 2001.
24. Sano H, Yoshikawa T, Pereira PN, Kanemura N, Morigami M, Tagami J, Pashley DH. Long-term durability of dentin bonds made with a self-etching primer, *in vivo*. *J Dent Res* 78:906-911, 1999.
25. Shono Y, Terashita M, Shimada J, Kozono Y, Carvalho RM, Russell CM, Pashley DH. Durability of resin-dentin bonds. *J Adhes Dent* 1:211-218, 1999.
26. Wang H, Shimada Y, Tagami J. Shear bond stability of current adhesive systems to enamel. *Oper Dent* 29:168-175, 2004.
27. Paul SJ, Welter DA, Ghazi M, Pashley D. Nanoleakage at the dentin adhesive interface vs μ -tensile bond strength. *Oper Dent* 24:181-188, 1999.
28. Tay FR, Pashley DH, Yoshiyama M. Two modes of nanoleakage expression in single-step adhesives. *J Dent Res* 81:472-476, 2002.
29. Tay FR, King NM, Chan KM, Pashley DH. How can nanoleakage occur in self-etching adhesive systems that demineralize and infiltrate simultaneously? *J Adhes Dent* 4:255-269, 2002.
30. Toledano M, Osorio R, Ceballos L, Fuentes MV, Fernandes CAO, Tay F, Carvalho RM. Microtensile bond strength of several adhesive systems to different dentin depths. *Am J Dent* 16:292-298, 2003.
31. Konno AN, Sinhoreti MA, Consani S, Correr SL, Consani L. Storage effect on the shear bond strength of adhesive system. *Braz Dent J* 14:42-47, 2003.
32. Hashimoto M, Ohno H, Sano H, Kaga M, Oguchi H. Degradation patterns of different adhesives and bonding procedures. *J Biomed Mater Res* 15:324-330, 2003.
33. Asmussen E, Peutzfeldt A. Short-and long-term bonding efficacy of a self-etching, one-step adhesive. *J Adhes Dent* 5:41-45, 2003.
34. Armstrong SR, Vargas MA, Fang Q, Laffoon JE. Microtensile bond strength of a total-etch 3-step, total-2-step, self-etch 2-step, and a self-etch 1-step dentin bonding system through 15-month water storage. *J Adhes Dent* 5:47-56, 2003.
35. Tay FR, Pashley DH, Suh BI, Carvalho RM, Itthagarun A. Single-step adhesives are permeable membranes. *J Dent* 30:371-382, 2002.

국문초록

상아질 접착 후 저장기간에 따른 접착제의 접착력 변화

조영곤^{1*} · 반일환¹ · 유미경²

¹조선대학교 치과대학 치과보존학교실, ²전북대학교 치과대학 치과보존학교실

본 연구는 상아질에 2단계와 단일 단계 자가 산부식 접착제를 적용하여 복합레진을 접착한 후 저장기간에 따른 미세인장 결합강도와 접착계면의 변화를 상호 비교하기 위하여 시행하였다.

발거된 상·하악 대구치 48개의 교합면측 상아질을 노출시켜 12개씩 4개의 군으로 분류하였다. 사용된 접착제의 종류에 따라 SE Bond 군, AdheSE 군, Adper 군, Xeno III 군으로 분류하여 접착제를 적용한 후, 동일 회사의 복합레진을 4 mm 두께로 접착시켰다. 각 군당 4개의 치아를 선택하여 증류수가 담겨진 용기에 집어넣고 37℃의 항온기에 각각 1일, 15일, 30일 동안 저장한 후 시편을 제작하여 각각 미세인장 결합강도의 측정과 주사전자 현미경 관찰 하여 다음과 같은 결과를 나타내었다. 2단계 자가 산부식 접착제는 1일에서 30간의 저장기간 동안 결합강도가 점차적으로 감소하였지만 통계학적으로 유의한 차이를 나타내지 않았고, 상아질과 접착제 간에 긴밀한 접착관계를 보였다. 반면에 단일 단계 자가 산부식 접착제는 1일의 저장기간에 비해 30일의 저장기간에서 통계학적인 결합강도의 감소를 나타내었으며, 상아질과 접착제 간에 넓은 간극이 관찰되었다. 따라서 본 연구에서 나타난 두 종류의 30일 동안의 접착내구성은 2단계 자가 산부식 접착제가 단일 단계 자가 산부식 접착제보다 우수한 것으로 나타났다.

주요어: 저장기간, 접착력 변화, 2단계와 단일 단계 자가 산부식 접착제, 미세인장 결합강도, 접착계면의 변화