

알칼리와 열처리에 의한 임플란트의 표면 특성 및 골유착 안정성에 관한 연구

송윤석¹ · 조인호²

단국대학교 치과대학 치과보철학교실¹대학원생, ²교수

생체 활성 재료는 생체 내에서 자가적으로 인회석 층 (apatite layer)을 형성하여, 골과의 생화학적 결합이 가능해야 한다. 알칼리와 열처리를 통하여 생체 활성 표면을 얻을 수 있는 것으로 보고되고 있다.

본 실험에서는 알칼리 및 열처리를 시행한 임플란트들의 안정성을 평가하고자 하였다. 실험군의 분류로 1군은 대조군인 선반 가공 임플란트군, 2, 3군은 60°C, 5 M의 NaOH 용액에 24시간 처리한 후, 각각 대기 중 및 진공 상태 600°C에서 1시간 동안 열처리하였다.

처리된 시편은 FESEM, XPS, TF-XRD 및 AFM을 이용하여 표면 특성을 관찰하고, 임플란트의 안정성을 위해 공진 주파수와 페리오테스트 및 역 토오크를 측정하고, 골유착 안정성에 관한 차이를 비교 분석하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

1. 표면 특성: 알칼리 및 열처리를 시행한 2, 3군은 비슷한 양상의 거친 표면을 보여주었다. 알칼리 처리를 시행한 2군과 3군에서 1군과는 달리 높은 함량의 나트륨 이온이 검출되었으며, 결정구조 분석 결과 2군에서 에추석 (antase)과 금홍석 (rutile)이 혼재된 상태로 금홍석이 우세한 양상을 보여주었다.

2. 공진 주파수 분석: 군간 비교에서 12주에 2군이 1, 3군에 비해 통계적으로 유의하게 높은 측정치를 보였다. 주간 비교시, 1, 2군은 4주 이후에 유의한 증가를 보여주었고, 3군은 2주와 4주에서 각각 유의한 증가를 보여주었다 ($P < .05$).

3. 페리오테스트 분석: 주간 비교에서 1, 2군은 4주 이후에 유의하게 감소를, 3군은 2주와 4주에서 각각 유의한 감소를 보여주었다 ($P < .05$).

4. 역 토오크 분석: 군간 비교에서는 2, 4, 8주에서는 2군이 1, 3군에 비해 유의하게 높은 측정값을 보여주었다. 주간 비교에서는 1, 3군은 4주, 12주에서 유의한 증가를 보여주었고, 2군은 4주부터 유의한 증가를 보여주었다 ($P < .05$).

이상의 결과로 볼 때, 알칼리 및 대기 중 열처리를 통해서 적절한 결정 구조의 산화막을 가진 생체 활성화된 무정형의 나트륨 티탄산염 층을 얻을 수 있었고, 알칼리 및 진공 상태 열처리만으로도 나트륨이 함유된 생체 활성화된 표면을 얻을 수 있었다고 사료된다. 또한 이런 처리 과정으로 형성된 표면 층들은 임플란트의 초기 골유착에 도움을 줄 수 있는 유용한 방법 중 하나라고 사료된다. (대한치과보철학회지 2008;46:490-9).

주요단어: 알칼리 및 열처리, 임플란트 안정성, 공진 주파수 분석, 페리오테스트 분석, 역 토오크 분석

서론

최근 티타늄의 수산화나트륨 (NaOH)을 이용한 처리법이 소개되고 있다. 과거 다양하게 사용되었던 sandblasted large grit acid etching (SLA) 등과 같은 강산을 통한 처리법이 표면에 강산이 잔류되어 문제를 야기할 수 있는 것¹과 달리, 티타늄 표면을 알칼리인 수산화나트륨으로 처리할 경우, 알칼리 이온을 포함하는 나트륨 티탄산염 겔 층 (sodium titanate gel layer)이 형성된다.^{2,5} 이렇게 형성된 층은 5 gf의 외력으로도 쉽게 나가는 매우 불안정한 층으로,

임플란트를 식립할 때 손상되어 인회석 형성 능력이 소실될 수 있다.² 그러나 600°C로 열처리하면 무정형의 나트륨 티탄산염 층 (amorphous sodium titanate layer)으로 전환되며, 이렇게 처리된 티타늄을 인공체액 (SBF: simulate body fluid)에 담그어 두면 나트륨 이온이 배출되고, 수산기가 유입되어, 음극 성향을 띤 티타늄 산화 하이드로겔 층 (titanium oxide hydrogel layer)이 형성이 된다. 이렇게 생긴 표면에 양극 성향의 칼슘 이온이 결합되어, 다시 양극 성향의 무정형의 칼슘 티탄산염 층 (amorphous calcium titanate layer)이 형성되고, 이곳에 다시 음극 성향의 인 이

교신저자: 조인호

330-716 충청남도 천안시 신부동 산 7-1 단국대학교 치과대학 보철학교실 041-550-1971: e-mail, cho8511@dku.edu

원고접수일: 2008년 5월 13일 / 원고최종수정일: 2008년 7월 15일 / 원고채택일: 2008년 8월 29일

온이 결합되어 안정적인 무정형의 인산 칼슘 층 (amorphous calcium phosphate layer)이 형성되어, 이 곳을 중심으로 결정형의 인회석 (crystalline apatite)으로 전환된다.^{2,5,6} 일단 이와 같은 인회석 핵 (apatite nuclei)이 형성되면, 칼슘과 인 이온의 지속적 침착으로 균일하고 단단한 인회석 층 (apatite layer)으로 성장을 한다. 이런 인회석 층은 골과 직접 결합하는 능력을 갖게 되는 생체 활성도의 전제조건이 된다고 생각할 수 있다.

본 연구에서는 알칼리와 열처리가 임플란트의 표면에 미치는 영향을 보고자, field emission scanning electron microscope (FESEM), x-ray photoelectron spectroscopy (XPS), 박막-X선 회절분석기 (TF-XRD)를 이용하여 표면 특성을 분석하고, 골유착 안정성 평가를 위해 임플란트를 가토에 식립하여, 공진 주파수, 페리오테스트 및 역 토오크를 측정하였다.

실험 재료 및 방법

1. 임플란트의 설계 및 제작

직경 3.3 mm, 길이 7.0 mm의 나사형 선반 가공 티타늄 임플란트 (DSI, Yang San, Korea)를 제작하였다. 임플란트들은 세 개의 군 (Fig. 1)으로 나누어 한 개의 대조군과 두 개의 실험군으로 분류하였다. 각 군은 40개씩 총 120개의 임플란트를 각 주마다 군당 10개씩 동물 실험에 사용하

였다. 각 군의 분류는 Table I 에 요약하였다.

1군은 대조군으로서 순수 상용 티타늄을 선반 가공하였다.

2군은 알칼리 및 대기 중에서 열처리를 시행한 군으로, 60℃, 5 M의 NaOH 용액에 24시간 처리한 후, 600℃에서 1시간 동안 열처리를 시행하여 제작하였다.

3군은 알칼리 및 진공 상태에서 열처리한 군으로, 2군과 마찬가지로 60℃, 5 M의 NaOH 용액에 24시간 처리한 후, 진공 상태 600℃에서 1시간 동안 열처리를 시행하여 제작하였다.

2. 표면 분석

표면 형태, 결정 구조 및 표면 거칠기의 분석에 FESEM (S-4100 CS, Hitachi Co., Tokyo, Japan), XPS (PHI MODEL 5800 ESCA, Physical Electronics Inc., Boston, USA), 박막-X선 회절분석기 (RINT-2500, Rigaku Co., Tokyo, Japan), AFM (EasyScan E-AFM, Nano-Surf Co., Liestal, Switzerland)이 이용되었다.

3. 동물 실험

본 연구에서는 생후 12개월 전후, 평균 체중 3.4 kg의 뉴질랜드 가토 20마리를 사용하였다. 좌우측 경골에 3개씩, 도합 6개의 임플란트를 매식하였다 (Fig. 2). 2, 4, 8, 12주

Table I. Preparation of experimental groups

Group	Preparation	Remark	N
1	Machined	Control	40
2	Alkali + 600℃ heat treatment in atmosphere	Alkali/Heat in atmosphere	40
3	Alkali + 600℃ heat treatment in vacuum	Alkali/Heat in Vacuum	40



Fig. 1. Experimental implant specimens.

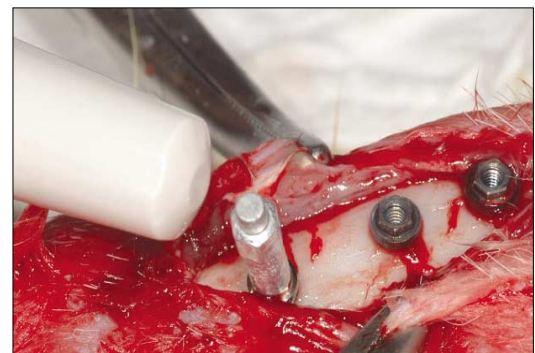


Fig. 2. Fixture installation.

에 과량의 barbiturate를 정맥주사하여 가도를 희생시켜 시편을 얻었다.

4. 임플란트의 골유착 안정성 평가

임플란트의 골유착 안정성은 공진 주파수 분석(resonance frequency analysis)과 페리오테스트(periotest) 및 역 토오크 측정(removal torque measurement)으로 평가하였다.

5. 통계 처리

윈도우용 SPSS version 12.0 (SPSS, Chicago, USA)을 사용하여 평균과 표준편차를 구하였으며, 각 실험군 간의 유의성을 알아보기 위하여 one-way ANOVA test를 시행하였고, 다중 비교 분석으로 Duncan method를 이용하여 95% 유의수준에서 검증하였다.

결과

1. 표면 특성

(1) 표면 형태 분석

각 군들의 표면 형태를 FESEM으로 촬영한 결과 1군은 대조군으로 선반 가공에 의한 구와 굽힌 모습이 나타났으며, 임플란트 상면과 나선 심부가 더 매끈한 모습을 보여주었다. 알칼리 처리 및 대기 상태에서 열처리를 시행한 2군에서는 다소 거칠어진, 외부에 형성된 막의 모습을 볼 수 있었다. 외형의 모습이 어떤 일정한 규칙성을 갖는 모습을 보여주지는 못하며, 무정형의 입자들이 불규칙적으로 산재된 모습을 보여주고 있었다. 임플란트 상면과 나선 침부에서는 처리 과정으로 생긴 막의 형태의 변화된 모습이 확연히 나타났지만, 나선 심부에서는 막의 형태로 인한 입자들이 덜 거칠며, 일정하게 산재된 모습을 보여주고 있었다. 3군의 경우, 임플란트 상면과 나선 심부는 2군과 유사한 모습을 보여주고 있었으나, 나선 침부는 나선 심부처럼 전체적으로 균일한 막 위에 결정체들이 붙어있는 모습을 보여주었다(Fig. 3).

(2) 표면 구성 성분 분석

XPS를 이용한 표면 구성 성분 분석결과 알칼리 및 대기 중에서 열처리된 2군에서 가장 높은 나트륨 이온 피크가 관찰되었다. 알칼리 및 진공 상태의 열처리를 한 3군은 2군보다는 낮았지만, 대조군인 1군보다는 높은 나트륨 이

온 피크를 보여주었다. 따라서 2, 3군에서 1군에 비해 상대적으로 높은 나트륨 이온의 검출로, 알칼리 처리로 인한 효과를 확인할 수 있었다. 대기 상태에서 열처리한 2군이 1, 3군에 비해 높은 산소 피크를 보여주었고, 이런 결과는 상대적으로 대기 중에서의 열처리로 인한 산화막의 형성으로 인한 높은 산소 함유량을 의미하였다. 이외에 세 군 모두에서 유사한 수준의 티타늄 피크를 보였으며, 탄소도 소량 발견되었다(Fig. 4).

(3) 결정 구조 분석

산화막 구성상을 박막-X선 회절분석기를 이용하여 분석하였다(Fig. 5). 알칼리 및 대기 중에서 열처리한 2군에서 anatase와 rutile이 혼합된 양상을 나타내었으나, 그 중 rutile의 양이 우세함을 알 수 있었다. 알칼리 및 진공 상태에서 열처리한 3군은 2군과는 달리 rutile이 소량 검출되었고 전체적으로 무정형 형태의 티타늄 산화막의 결정 구조를 보여주었다. 진공 상태에서 열처리한 3군에서 인위적 산화막이 형성되지 않았음을 알 수 있었다.

(4) 표면 거칠기 분석

AFM으로 측정된 세군의 표면 거칠기 모습은 Fig. 6에 나와 있다. 통계적 분석 결과 알칼리 및 대기 상태에서 열처리를 시행한 2군이 진공 상태에서 열처리한 3군과 선반 가공된 1군에 비해 Sa 및 Sq 모두에서 더 큰 거칠기를 보여주었으나, 통계적 유의성은 없었다(Fig. 7).

2. 임플란트 안정성 측정

(1) 공진 주파수 측정 결과

측정치는 Osstell™ mentor를 이용한 ISQ로 표시되었고, 모든 군이 시간이 지남에 따라 측정값이 높아지는 양상을 보였다. 결과 값을 비교한 모습은 다음과 같았다(Fig. 8).

(2) 페리오테스트 측정 결과

페리오테스트 측정치는 0, 2주에는 높은 값을 보였으나, 4주 이후로는 안정성이 증가하는 추세를 보여주었고, 12주까지 점진적으로 감소하는 추세를 보여주었다(Fig. 9).

(3) 역 토오크 측정 결과

측정치는 Ncm로 표시되었고 결과 값을 비교한 모습은 다음과 같았다(Fig. 10).

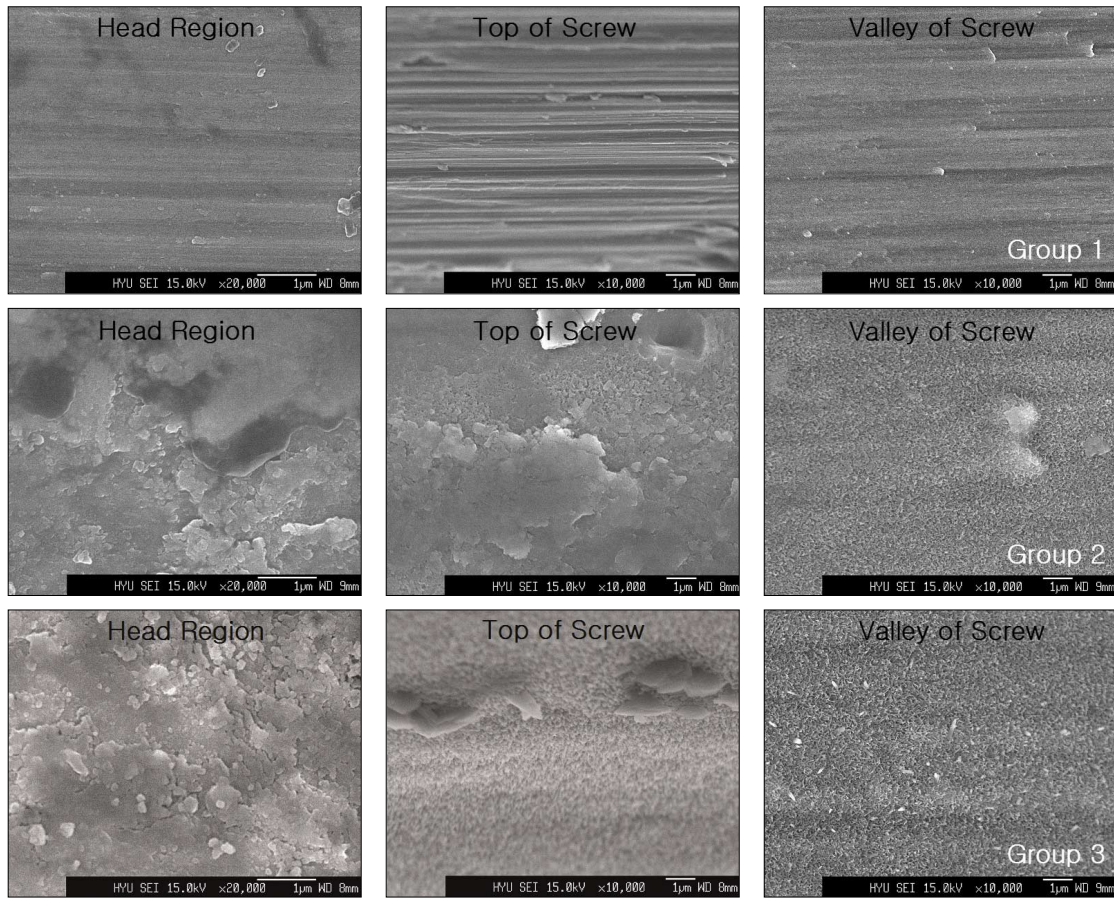


Fig. 3. FESEM (S-4100 CS, Hitachi Co., Tokyo, Japan) images of groups 1 (above), 2 (middle), and 3 (below).

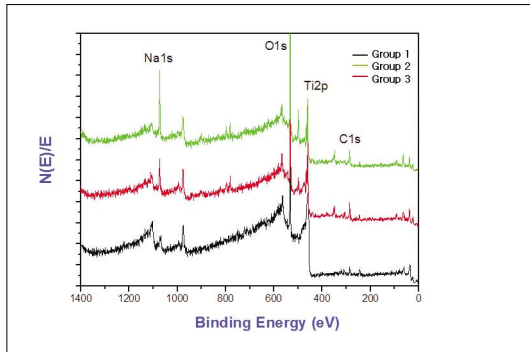


Fig. 4. X-ray photoelectron spectra of the specimens.

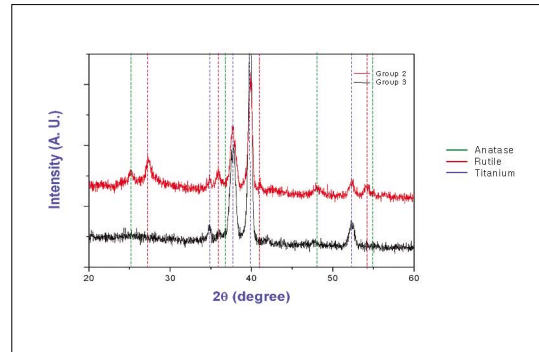


Fig. 5. TF-XRD patterns of the surfaces of alkali and heat treated titanium.

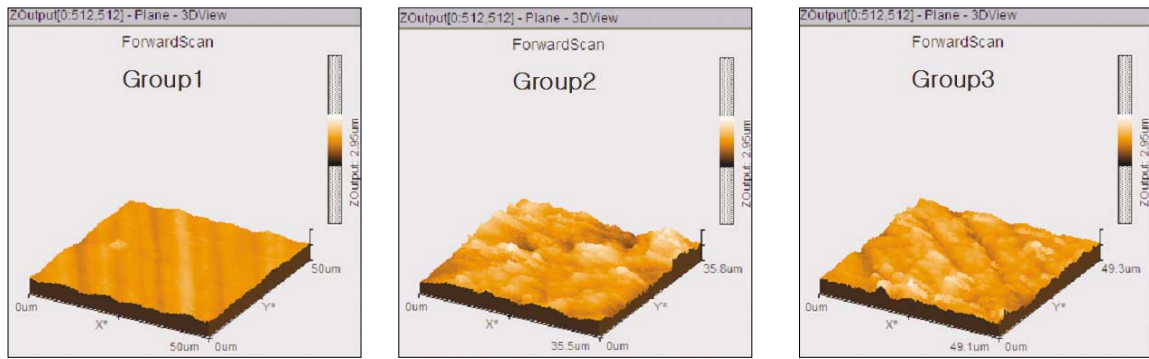


Fig. 6. AFM (EasyScan E-AFM, Nano-Surf Co., Liestal, Switzerland) images of each specimen.

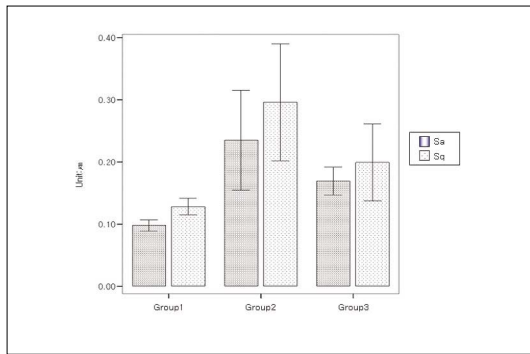


Fig. 7. Sa and Sq values of each group.

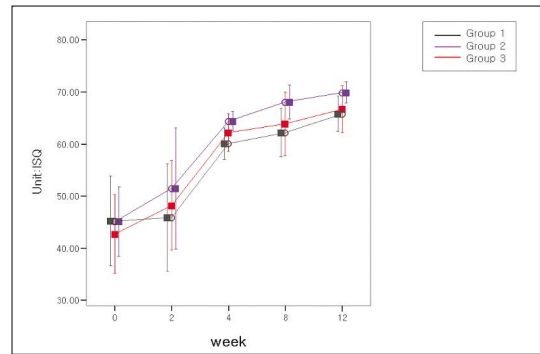


Fig. 8. Resonance frequency values (ISQ) of each group.

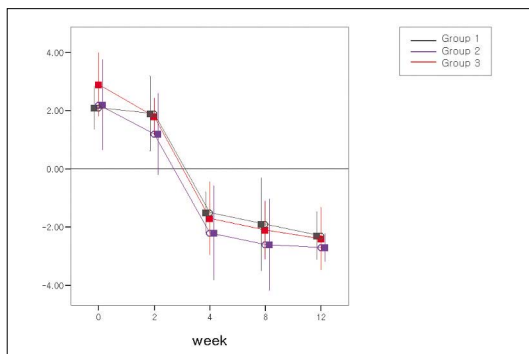


Fig. 9. Periosteal values of each group.

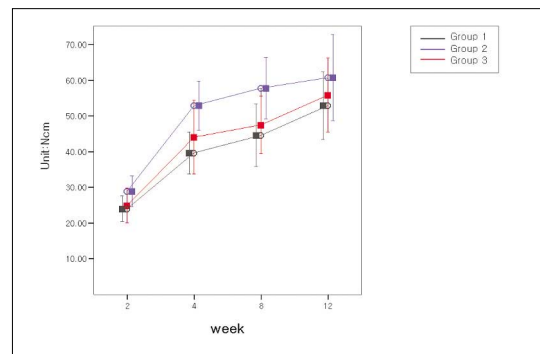


Fig. 10. Removal torque values (Ncm) of each group.

총괄 및 고안

최근 표면 성분의 변화를 통한, 티타늄의 생체활성도 (bioactivity)를 증진시키기 위한 연구들이 소개되고 있다.⁷ 생체활성도를 갖기 위해서는 임플란트 표면에 생체골 내에서 인회석 층 (apatite layer)을 형성할 수 있어야 하며, 이렇게 형성된 인회석 층을 통해서 골과 직접적 결합이 가능해야 한다.^{2,4,5,8,9} 이런 생체 활성화 표면을 얻기 위한 방법으로 알칼리와 열처리,^{2,8,9} 양극 산화 방법 중 갈슘, 인, 황을 포함하는 전해질을 사용하는 방법^{10,11} 그리고 불소를 표면에 포함시키는 방법,^{12,13} 및 마그네슘을 표면에 유입시킴으로써, 활성화 표면을 구하는 방법들이 대표적으로 소개되고 있으며,¹⁴ 일부 상용화도 되고 있다.

이 중 알칼리를 통한 표면처리법을 사용함으로써, 간단하면서도 저렴하게 생체활성 티타늄 표면을 얻을 수 있다고 보고되고 있다. 본 실험에 사용한 60°C, 5 M NaOH 용액에 24시간 알칼리 표면처리 조건은 티타늄 표면에 나트륨 티탄산염 겔 층 (sodium titanate gel layer)을 형성할 수 있는 가장 이상적인 방법으로 보고되고 있으며,^{15,16} Kokubo 등⁵은 이와 같이 처리한 티타늄 디스크를 이용한 인공체액 (SBF: simulated body fluid) 실험에서, 처리를 하지 않은 군과 비교하여 알칼리 처리한 군이 생체활성도를 띠며, 인공체액 내에서 칼슘과 인 이온을 유입하여, 생화학적으로 티타늄과 결합하는 인회석 층이 형성되었음을 보고하였다. 그러나 이와 같이 알칼리 처리만을 시행한 경우, 형성되는 나트륨 티탄산염 겔 층이 불안정한 상태로, 매식 과정에서 파괴될 것으로 추정된다. 이런 문제점들을 개선시키기 위한 방법으로 제시된 것이 열처리이다.^{2,8,9} Yang 등¹⁷은 티타늄에 대한 열처리의 효과로 결정화 (crystallization)와 결정의 성장 (crystal growth)에 대해 언급하였고, 생체 친화성을 증진시키는데 큰 기여가 있다고 보고 하였으며, 이상적인 조건은 500-600°C 라고 하였는데, 600°C 이상 가열하게 되면 티타늄이 부서지기 쉬운 β -phase로 변환되기 때문이라고 설명하고 있다. Lim¹⁸은 알칼리 처리를 한 티타늄을 500°C 이상의 열처리를 시행함으로써, 티타늄의 산화막에 금홍석 결정 (rutile crystal) 구조가 나타나며, 600°C 열처리에서 최적의 세포반응을 보였다고 보고하였다. 또한 Kim 등²은 60°C, 5 M NaOH 용액에 24시간 알칼리 표면처리를 한 경우 형성되는 나트륨 티탄산염 겔 층은 경도가 매우 약하여, 다이아몬드 칩으로 긁을 경우 5 gf의 약한 외력으로도 긁혀 나갈 수 있으나, 이를 600°C 열처리를 시행함으로써, 경도를 30 gf로 증가시킬 수 있다고 보고하였다. 또한 수열 (hydrothermal) 처리 방법으로도 열처리를 할 수 있다. 그

러나 Jonasova 등¹⁵은 알칼리 처리를 한 시편을 물로 5분간 세정을 할 경우, 나트륨 이온의 함량이 절반으로 감소한다고 보고한 결과에 따라, 수열 처리는 배제를 하였다. 따라서 본 연구에서는 60°C, 5 M NaOH 용액에 24시간 침지 (soaking)하고, 대기 중 600°C 열처리를 한 군을 제작하였다. 그러나 열처리만으로도 산화막의 증가로 인한 티타늄 표면의 활성화가 가능하다고 보고되고 있다. Kern 등¹⁹은 티타늄에 열처리를 할 경우, 처리되지 않은 선반 가공된 군에 비해서, 접촉각 (contact angle)이 유의하게 감소하며, 열처리를 하지 않은 군의 표면층은 무정형의 산화층 (amorphous oxide)을 이루며, 열처리를 시행할 경우 이 층이 결정형의 예추석 산화층 (crystalline anatase oxide)으로 전환되어, 더욱 친수성의 표면을 얻을 수 있다고 하였다. 이와 같은 열처리 방법으로 얻어질 수 있는 장점을 배제하기 위해서, 다른 한 군은 알칼리 처리 후 진공 상태에서 열처리를 함으로써, 순수하게 알칼리 처리로 인해 형성되는 나트륨 티탄산염 겔 층의 경화를 통한 무정형의 나트륨 티탄산염 층 (amorphous sodium titanate layer)의 형성을 위해서, 앞서의 군과 마찬가지로 알칼리 처리한 후, 진공 상태의 600°C에서 열처리하였다.

표면 처리 후, 표면의 형태 분석은 FESEM을 이용하였다. Wang 등⁶은 알칼리 처리를 한 티타늄 디스크에서 균일한 다공성의 망상 구조가 나타났다고 하였으며, Lim¹⁸은 티타늄 디스크를 500°C 이상 열처리를 할 경우, 침상 구조가 나타났다고 보고하였다. 본 연구에서는 알칼리 처리 및 대기 중에서 열처리를 시행한 2군에서는 다소 거칠어진, 외부에 형성된 막의 모습을 볼 수 있었다. 외형의 모습이 어떤 일정한 규칙성을 갖는 모습을 보여주지는 못하며, 무정형의 입자들이 불규칙적으로 산재된 모습을 보여주었다. 임플란트 상면과 나선 침부에서는 처리 과정으로 생긴 막의 형태의 변화된 모습이 확연히 나타나지만, 나선 심부에서는 막의 형태로 인한 입자들이 덜 거칠며, 일정하게 산재된 모습을 볼 수 있었다. 여러 보고들과는 다른 결과가 나타난 이유는 명확하지 않으나, 디스크와는 달리 임플란트의 복잡한 나선 구조로 인한 환경의 차이와 SEM과 FESEM간의 영상 모습의 차이가 영향을 미쳤을 것으로 사료된다.

표면 구성 성분 분석에는 XPS를 이용하였다. Kim 등²은 알칼리와 열처리의 결과로 형성된 표면층에서 처리를 하지 않은 경우와 비교하여, 나트륨과 산소 이온이 검출이 되었다고 보고하였고, Jonasova 등¹⁵은 다양한 농도의 알칼리 처리를 통해, 표면에 나트륨 이온의 검출을 확인할 수 있었다고 보고하였다. 본 연구에서도 알칼리 및 대기 중에서 열처리된 2군에서 가장 높은 나트륨 이온 피

크를 보여주었다. 알칼리 및 진공 상태의 열처리를 한 3군은 2군보다는 낮지만, 대조군인 1군보다는 높은 나트륨 이온 피크를 보여주었다. 따라서 2, 3군에서 1군에 비해 상대적으로 높은 나트륨 이온 함량이 검출되었고, 이는 이전의 보고들과 일치하는 알칼리 처리로 인한 효과라고 사료된다. 대기 상태에서 열처리한 2군이 1, 3군과 비교해 높은 산소 피크를 보여주었고, 이런 결과는 상대적으로 대기 중에서의 열처리로 형성된 산화막의 높은 산소 함유량을 의미한다고 사료된다.

표면 거칠기는 nm 수준의 측정이 가능한 AFM을 사용하였다. Goransson 등²⁰은 티타늄을 알칼리로 처리할 경우 submicron size pore들이 형성된다고 보고하였다. 본 연구에서 거칠기 측정 결과, Sa와 Sq 모두 대기 상태에서 열처리를 한 2군이 진공 상태의 열처리 및 선반가공된 3군 시편들에 비해서 거친 결과를 보여주었으나, 통계적 유의성을 보이지는 못하였다. 이와 같은 거칠기의 증가는 대기 중에서 열처리함으로써, 산소의 유입으로 인한 산화막 증가의 결과로 사료된다. 물론 열처리를 시행한 후에도 막의 거칠기는 0.2-0.3 μ m 정도로, 이전의 연구 결과와 일치하는 모습을 보여주었다. 이런 세포보다 작은 (subcellular sized) 소공들이 세포 활성화에 어떤 영향을 미치는지에 대해서는 아직 명확히 밝혀지지 않고 있다. 그러나 본 실험을 통해서 얻어진 이런 표면 거칠기는 최근 많은 연구가 되고 있는 양극 산화법 등으로 인해 형성되는 거칠기와 비교해서 미약한 수준이고,^{10,14,21,22} 실제로도 선반 가공된 임플란트의 거칠기에 비해서도 유의한 차이를 보이지 않았다. Sul 등¹⁴이 Mg 임플란트, TiUnité®, Osseotite®를 비교한 결과를 보면 Mg 임플란트의 거칠기는 TiUnité®에 비해서 거칠기 면에서는 절반 수준에 미치지 않았으나, 결과적으로는 더욱 우수한 골유착률을 보였다. 이런 결과는 마그네슘 이온의 역할에 의한 것이라고 보고하였다. 따라서 본 연구의 결과에서 보여주는 알칼리와 대기 상태에서의 열처리를 한 임플란트들의 상대적으로 우수한 골유착도 단순한 거칠기의 증가로 인해서가 아니라, 표면층에 유입된 알칼리 이온의 영향에 의한 것이라고 사료된다.

결정 구조 분석을 위하여 TF-XRD를 사용하였다. Lausmaa²³는 금홍석 (rutile)이 유리하다고 하였고, Uchida 등²⁴은 반대로 예추석 (anatase)이 유리하다고 하였으며, Yang 등¹⁷과 Lim¹⁸은 산화막에 두 종류의 결정 구조가 혼재하여 있는 경우가 생체 친화성이 우수하다고 보고하였다. 본 연구의 결과는 대기 중에서 열처리한 2군에서는 예추석과 금홍석 결정구조가 혼재된 양상 속에서 금홍석이 우세한 양상을 보여주었다. 2군과는 달리 진공 상태

에서 열처리를 시행한 3군의 경우는 무정형의 티타늄 (amorphous titanium) 입자 피크가 주를 이루며, 금홍석의 흔적만 다소 있을 뿐이었다. 이는 역시 산소가 없는 상태에서의 열처리로 인해, 인위적 산화막이 생기지 않았기 때문인 것으로 사료된다. 본 연구에서도, 2군이 보여준 우수한 결과에 이런 혼재된 결정구조가 영향을 미쳤을 것으로 사료된다. 그러나 알칼리 처리 및 진공 상태에서의 열처리를 한 3군도 선반 가공된 1군에 비해 높은 측정치들을 보여주었다는 결과로 미루어 보아, 단순한 결정구조의 차이만이 본 연구의 결과에 기여하지는 않았다고 사료된다.

공진 주파수 분석을 시행한 결과들을 보면, Lim과 Cho¹²가 보고한 0주에서의 측정치들과 비교해서 상대적으로 낮은 측정값들을 보여주었다. 이는 초기 고정으로 인한 효과를 배제하고, 순수하게 표면 특성의 효과를 연구하기 위한 목적으로 태핑 (tapping)의 정도를 통상적인 술식보다 과도하게 시행한 결과로 사료된다. 이런 이유로 인하여, 통상적으로 매식 후 2-4주경에 압축력에 의한 골흡수 및 재형성으로 인한 안정성의 일시적 저하 현상도 본 연구에서는 뚜렷하게 나타나지 않은 것으로 사료된다. 0주에서는 1군이 45.2, 2군이 45.1로 거의 같은 수준의 측정치를 보인 반면, 3군이 42.7로 상대적으로 낮은 평균값을 보여주었다. 이는 매식 부위의 차이로 인한 영향이 있었을 것으로 사료된다. 알칼리 및 진공상태에서 열처리를 시행한 3군의 결과가 2군 보다 전체적으로 낮게 측정된 것에 이런 요인도 작용을 하였을 것이라 추정된다. 실제로 3군의 ISQ는 0주에서는 선반 가공된 1군에 비해 낮았지만, 2주부터는 1군에 비해 높은 양상으로 유지되었다. 알칼리 및 대기 상태에서의 열처리를 시행한 2군은 2주부터 0주에 비해 유의하게 측정치가 증가하였으며, 4주 이후는 다시 2주와 0주 모두와 통계적으로 유의한 증가를 보였다. 이는 2군이 초기 골유착에 유리한 영향을 미쳤기 때문에 나타난 결과라고 사료되며, 여기에는 앞서 언급한 결정구조의 차이와, 표면에 형성된 나트륨 티탄산염 겔 층이 기여한 것으로 사료된다. 페리오테스트 결과의 측정치는 모든 주에서 세 군간의 유의차가 나타나지 않았다. 역 토오크 분석의 결과를 보면 2, 4, 8주 모두에서 2군이 1, 3군에 비해 유의하게 큰 측정치를 보여주었다. 그러나 2주에서의 측정치는 1군과 3군이 거의 동일한 수치를 보였으나, 4주 이후부터는 3군이 다소 높은 역 토오크를 보여주었다. 앞서의 공진 주파수 분석과 마찬가지로, 이는 알칼리 처리를 통한 티타늄 표면의 나트륨 이온의 함입이 초기 골유착에 긍정적 영향을 미치는 사례로 보여진다.

이상의 결과로 볼 때, 임플란트 표면의 알칼리 및 열처리를 통해 형성되는 나트륨 티탄산염 겔 층은 티타늄 표면의 생체 활성화를 시킴으로써, 초기 골유착을 증진시킬 수 있는 좋은 방법 중 하나라고 사료된다. 그러나 아직은 이와 같이 형성된 층이 불안정한 상태를 보이며, 이를 해소할 수 있는 이상적 방법에 대한 추가적 연구 및 침지와 열처리 외에도 알칼리 (Na) 이온을 임플란트 표면에 함유시킬 수 있는 방법에 관한 추가적 연구가 필요할 것으로 사료된다.

결론

알칼리와 열처리를 시행한 임플란트들의 표면 특성을 관찰하고 가토에 식립하여 골유착 안정성을 측정하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

1. 표면 특성: 알칼리 및 열처리를 시행한 2, 3군은 비슷한 양상의 거친 표면을 보여주었다. 알칼리 처리를 시행한 2군과 3군에서 1군과는 달리 높은 함량의 나트륨 이온이 검출되었으며, 결정구조 분석 결과 2군에서 예추석 (antase)과 금홍석 (rutile)이 혼재된 상태로 금홍석이 우세한 양상을 보여주었다.
2. 공진 주파수 분석: 군간 비교에서 12주에 2군이 1, 3군에 비해 통계적으로 유의하게 높은 측정치를 보였다. 주간 비교시, 1, 2군은 4주 이후에 유의한 증가를 보여주었고, 3군은 2주와 4주에서 각각 유의한 증가를 보여주었다 ($P < .05$).
3. 페리오테스트 분석: 주간 비교에서 1, 2군은 4주 이후에 유의하게 감소를, 3군은 2주와 4주에서 각각 유의한 감소를 보여주었다 ($P < .05$).
4. 역 토오크 분석: 군간 비교에서는 2, 4, 8주에서는 2군이 1, 3군에 비해 유의하게 높은 측정값을 보여주었다. 주간 비교에서는 1, 3군은 4주, 12주에서 유의한 증가를 보여주었고, 2군은 4주부터 유의한 증가를 보여주었다 ($P < .05$).

이상의 결과로 볼 때, 알칼리 및 대기 중 열처리를 통해서 적절한 결정 구조의 산화막을 가진 생체 활성화된 무정형의 나트륨 티탄산염 층을 얻을 수 있었고, 알칼리 및 진공 상태 열처리만으로도 나트륨이 함유된 생체 활성화된 표면을 얻을 수 있었다고 사료된다. 또한 이런 처리 과정으로 형성된 표면층들은 임플란트의 초기 골유착에 도움을 줄 수 있는 유용한 방법 중 하나라고 사료된다.

참고문헌

1. Darvell BW, Samman N, Luk WK, Clark RK, Tideman H. Contamination of titanium castings by aluminum oxide blasting. *J Dent* 1995;23:319-22.
2. Kim HM, Miyaji F, Kokubo T, Nakamura T. Effect of heat treatment on apatite forming ability induced by alkali treatment. *J Mater Sci Mater Med* 1997;8:341-7.
3. Kim HW, Kim HE, Salih V, Knowles JC. Sol-gel modified titanium with thin hydroxyapatite thin films and effect on osteoblast-like cell responses. *J Biomed Mater Res* 2005;74:294-305.
4. Kokubo T, Kim HM, Kawashita M, Nakamura T. Bioactive metals: preparation and properties. *J Mater Sci Mater Med* 2004;15:99-107.
5. Kokubo T, Miyaji F, Kim HM, Nakamura T. Spontaneous formation of bone like apatite layer on chemically treated titanium metals. *J Am Ceram Soc* 1996;79:1127-9.
6. Wang C, Wang M, Zhou X. Nucleation and growth of apatite on chemically treated titanium alloy: an electrochemical impedance spectroscopy study. *Biomaterials* 2003;24:3069-77.
7. Hench L. Bioceramics: from concept to clinic. *J Am Ceram Soc* 1991;74:1487-510.
8. Chosa N, Taira M, Saitoh S, Sato N, Araki Y. Characterization of apatite formed on alkaline-heat-treated Ti. *J Dent Res* 2004;83:465-9.
9. Nishiguchi S, Nakamura T, Kobayashi M, Kim HM, Miyaji F, Kokubo T. The effect of heat treatment on bone bonding of alkali treated titanium. *Biomaterials* 1999;20:491-500.
10. Sul YT, Byon ES, Jeong Y. Biochemical measurements of calcium-incorporated oxidized implants in rabbit bone: effect of calcium surface chemistry of a novel implant. *Clin Implant Dent Relat Res* 2004;6:101-10.
11. Ishizawa H, Ogino M. Characterization of thin hydroxyapatite layers formed on anodic titanium oxide films containing Ca and P by hydrothermal treatment. *J Biomed Mater Res* 1995;29:1071-9.
12. Lim JB, Cho IH. A study on the surface characteristics and stability of implants treated with anodic oxidation and fluoride incorporation. Ph.D Thesis in 2005; College of Dentistry, Dankook University, Korea.
13. Ellingsen JE. Pre-treatment of titanium implants with fluoride improves their retention in bone. *J Mater Sci Mater Med* 1995;6:749-53.
14. Sul YT, Johansson CB, Albrektsson T. Which surface properties enhance bone response to implants? Comparison of oxidized magnesium, TiUnite, and Osseotite implant surfaces. *Int J Prosthodont* 2006;19:319-29.

15. Jonasova L, Muller FA, Helebrant A, Strnad J, Greil P. Hydroxyapatite formation on alkali-treated titanium with different content of Na⁺ in the surface layer. *Biomaterials* 2003;23:3095-101.
16. Maitz MF, Poon RW, Liu XY, Pham MT, Chu PK. Bioactivity of titanium following sodium plasma immersion ion implantation and deposition. *Biomaterials* 2005;26:5465-73.
17. Yang B, Uchida M, Kim HM, Zhang X, Kokubo T. Preparation of bioactive metal via anodic oxidation treatment. *Biomaterials* 2004;25:1003-10.
18. Lim YJ. Effects of heat treatment on the surface characteristics of titanium for implant. 2004; College of Dentistry, Seoul National University, Ph. D thesis.
19. Kern T, Yang Y, Glover R, Ong JL. Effect of heat treated titanium surfaces on protein adsorption and osteoblast precursor cell initial attachment. *Implant Dent* 2005;14:70-6.
20. Goransson A, Jansson E, Tengvall P, Wennerberg A. Bone formation after 4 weeks around blood-plasma-modified titanium implants with varying surface topographies: an *in vivo* study. *Biomaterials* 2003;24:197-205.
21. Sul YT, Johansson CB, Jeong Y, Roser K, Wennerberg A, Albrektsson T. Oxidized implants and their influence on the bone response. *J Mater Sci Mater Med* 2001;12:1025-31.
22. Sul YT, Johansson C, Wennerberg A, Cho LR, Chang BS, Albrektsson T. Optimal surface properties of oxidized implants for reinforcement of osseointegration: surface chemistry, oxide thickness, porosity, roughness, and crystal structure. *Int J Oral Maxillofac Implants* 2005;20:349-59.
23. Lausmaa J. Multi-technique surface characterization of oxide film of electropolished and anodically oxidized titanium. *Appl Surface Sci* 1990;45:189-200.
24. Uchida M, Kim HM, Kokubo T, Fujibayashi S, Nakamura T. Structural dependence of apatite formation on titania gels in a simulated body fluid. *J Biomed Mater Res A* 2003;64:164-70.

Surface characteristics and stability of implants treated with alkali and heat

Yun-Seok Song¹, DDS, In-Ho Cho², DDS, MSD, PhD

¹Graduate student, ²Professor,

Department of Prosthodontics, College of Dentistry, Dankook University, Korea

Statement of problem: Bioactive materials must have the ability to spontaneously form a bone like apatite layer on their surface and induce direct biochemical bonding to bone. A simple chemical treatment via alkali and heat has been revealed to induce bioactivity in titanium. **Purpose:** The purpose of this study was to evaluate the surface characteristics and stability of alkali and heat treated implants. **Material and methods:** Specimens were divided into three groups; group 1 was the control group with machined surface implants, groups 2 and 3 were treated with alkali solutions and heat treated in the atmosphere and vacuum conditions respectively. The surface characteristics were observed with FESEM, XPS, TF-XRD and AFM. Stability was evaluated with the resonance frequency analysis, periotest and removal torque values. One-way ANOVA and Duncan test were used for statistical analysis. **Results:** 1. Groups treated with alkali and heat showed similar characteristics. Groups 2 and 3 showed high compositions of Na ions on the surface with sub-micron sized pores compared to group 1. Group 2 showed mixed compositions of anatase and rutile with superior contents of rutile. 2. Resonance frequency analysis : The ISQ of group 2 showed significantly higher values than that of groups 1 and 3 at 12 weeks. The ISQ of groups 1 and 2 showed significant increase after 4 weeks, and the ISQ of group 3 increased significantly after 2 and 4 weeks respectively ($P < .05$). 3. Periotest: The PTV of groups 1 and 2 showed significant decrease after 4 weeks, and the PTV of group 3 showed significant decrease after 2 and 4 weeks respectively ($P < .05$). 4. Removal torque analysis: The removal torque value of group 2 was significantly higher than those of groups 1 and 3 at 2, 4 and 8 weeks. The removal torque values of groups 1 and 3 showed increase at 4 and 12 weeks, but the removal torque value of group 2 showed increase after 4 weeks ($P < .05$). **Conclusion:** An oxide layer with appropriate crystal structure and amorphous sodium titanate layer can be obtained on titanium implants through alkali and heat treatment in the atmosphere, and even alkali and heat treatment in vacuum conditions, provided a bioactive surface containing sodium. These surface layers can be considered to be effective for enhancement of osseointegration and reduction of healing period for implant treatment. (*J Kor Acad Prosthodont 2008;46:490-9*).

Key words: Alkali and heat treatment, Implant stability, Resonance frequency analysis, Periotest, Removal torque analysis

Corresponding Author: **In-Ho Cho**

Department of Prosthodontics, College of Dentistry, Dankook University, San 7-1, Shinboo-Dong, Cheonan, Choongnam, 330-716, Korea

Tel.: +82 41 550 1971

E-mail: cho8511@dku.edu

Article history

Revised May 13, 2008 / Last Revision July 15, 2008 / Accepted August 29, 2008.