

## 수종의 불소방출 수복재의 탈회억제 효과 및 불소침투에 관한 연구

김송이 · 최성철 · 김광철 · 최영철 · 박재홍

경희대학교 치과대학 소아치과학교실

### 국문초록

자이오머(Giomer)는 레진강화형글라스아이오노머에 견줄 만큼 불소방출량이 많다고 하나, 우식예방 효과에 관한 연구들이 많지 않아 임상적용에 대한 근거가 부족한 실정이다. 본 연구는 자이오머(BF 군)를 포함하여 레진강화형글라스아이오노머(FF 군), 콤포머(DA 군)와 대조군인 콤포짓(FZ 군)의 우식억제 효과와 주변 치질로의 불소침투 양상을 비교하기 위하여, 공초점레이저주사현미경과 전자탐침미세분석기를 이용하여 각 수복재의 우식예방 효과를 비교하였으며, 다음과 같은 결과를 얻었다.

1. 수복물 주위 이차 인공우식에서 법랑질 외측병변의 깊이는 FZ 군에서 가장 깊었으며, BF 군이 가장 작게 나타났다(p<0.05).
2. 수복물과 법랑질 계면에 나타난 탈회억제층의 두께를 관찰한 결과 FZ 군이 가장 작게 나타났으며, FF, DA, BF 간에는 유의성 있는 차이를 보이지 않았다(p<0.05).
3. 법랑질에 침투된 불소농도는 BF, FF, DA의 순으로 높게 나타났다.
4. 상아질에 침투된 불소농도는 DA, BF, FF의 순으로 높게 나타났으며, 이는 상아질-수복물의 접착 계면에 영향 받는 것으로 보인다.

**주요어:** 자이오머(Giomer), 불소방출 수복재, 공초점레이저주사현미경, 전자탐침미세분석기

### 1. 서 론

이차우식은 수복물의 종류와 상관없이 치아수복의 실패와 재수복의 주요한 이유 중 하나로 알려져 있다<sup>1-3)</sup>. 이는 주로 치아수복물 계면에서 발견되며, 일반적으로 미세누출의 결과로 나타난다<sup>4)</sup>. 이러한 미세통로를 통한 우식성 세균의 재감염은 인접 치질에 일차우식과 유사한 탈회를 일으킨다<sup>4,5)</sup>. 현재 사용되는 직접 수복재들은 변연봉쇄가 완전하지 않아 미세누출을 피하기 어려우므로 이차우식 예방을 위해 수복재들의 항균성과 불소방출능이 요구된다<sup>6,7)</sup>. 현재 소아치과 영역에서 많이 사용되는 불소방출 수복재료에는 글라스아이오노머, 레진강화형글라스아이오노머, 콤포머, 콤포짓, 아말감 등이 있다<sup>8)</sup>.

글라스아이오노머는 불화알루미늄규산화유리(fluoroaluminosilicate glass)와 폴리알케노익산(polyalkenoic acid) 간의 산-염기 반응을 통해 다량의 불소가 방출되며<sup>9,10)</sup>, 불소의 재충전이 가능하여 많은 연구에서 수복물 주위 법랑질과 상아질의

불소함량 증가 및 우식예방 효과를 보였다<sup>11-17)</sup>. 하지만, 구강 내에서 용해도가 높으며, 초기물성이 좋지 않다는 단점이 있다<sup>18)</sup>.

이에 물성이 개선된 하이브리드 재료들이 개발되었으며, 대표적인 것이 광중합을 이용하는 레진강화형글라스아이오노머와 콤포머이다. 특히 레진강화형글라스아이오노머는 글라스아이오노머와 유사한 양의 불소를 방출하는 잠재력을 가진 것으로 알려졌다<sup>19)</sup>. 기본적으로 폴리알킬릭산에 광중합이 가능한 메타크릴레이트 성분을 첨가하여 만들어지며, 초기 경화 시 글라스아이오노머의 경화 반응과 동일한 산-염기 반응이 일어나지만, 광중합 성분에 의해 경감된다<sup>8)</sup>. 콤포머는 글라스아이오노머와 달리 혼합할 필요가 없고, 조작성이 뛰어나고, 복합레진과 유사한 물성을 나타낸다. 또한 글라스아이오노머와 동일하게 불소가 유리되는 필러 유리를 사용하여, 불소가 유리되는 장점이 있다<sup>8)</sup>. 하지만, 산-염기 반응이 거의 일어나지 않으며, 유리되는 불소양이 글라스아이오노머에 비해 작은 것으로 알려져 있다<sup>20)</sup>.

최근에는 '자이오머(Giomer(Glass ionomer + polymer))'

교신저자 : 박재홍

서울특별시 동대문구 회기동 1 / 경희대학교 치과대학 소아치과학교실 / 02-958-9373 / khupedo@khu.ac.kr

원고접수일: 2010년 05월 10일 / 원고최종수정일: 2010년 08월 04일 / 원고채택일: 2010년 08월 13일

라는 새로운 분류의 불소방출 수복재가 소개되었다. 자이오머는 pre-reacted glass(PRG) 필러 기술을 이용하는 불소방출 레진성분을 가지고 있다. 불화규산화유리필러(fluoro-silicate glass filler)를 바로 레진기질에 혼합하는 콤포머와 달리 자이오머는 수분 존재 하에 불화알루미늄규산화유리와 폴리알케노익산을 먼저 반응시켜 PRG 필러를 만든 후에 레진기질에 혼합한다<sup>21)</sup>. 따라서, 자이오머 내에는 불소방출 및 재충전에 중요한 역할을 하는 유리필러의 하이드로겔층이 콤포머보다 훨씬 광범위하며, 안정적인 글라스아이오노머 상을 형성하기 때문에 콤포머보다 뛰어난 불소방출 및 재충전 효과를 보인다<sup>20)</sup>. 제조사는 글라스아이오노머와 유사한 불소방출 효과, 생적합성, 심미성, 임상적 안정성 및 콤포머보다 좋은 물성 등을 주장하고 있다<sup>22)</sup>.

자이오머는 레진강화형글라스아이오노머에 견줄 만큼 불소방출량이 많다고 하나, 수복재로 사용되었을 때 우식억제와 치질로의 불소침투 등의 우식예방에 관한 연구들이 많지 않아 임상 적용에 대한 근거가 부족한 실정이다. 이에 본 연구에서는 자이오머를 포함한 불소방출 광중합 수복재들의 인공우식에 대한 억제효과를 공초점레이저주사현미경(CLSM)을 이용하여 관찰 및 비교해보고, 인접 치질로의 불소침투량을 전자탐침 미세분석기(EPMA)로 측정하여 자이오머의 우식예방 효과를 다른 불소방출 수복재들과 비교해보고자 한다.

## II. 연구 재료 및 방법

### 1. 연구재료

실험군으로 불소를 방출하는 수복재인 Fuji Filling™ LC(이

하 FF), Dyract® AP(이하 DA), Beautifil II(이하 BF)를 사용하였으며, 대조군은 불소를 방출하지 않는 콤포짓인 Filtek™ Z250(이하 FZ)으로 하여 4 군으로 나누었다. 실험에 사용된 표면처리제 및 접착제, 수복재는 Table 1, 2와 같으며, 각 수복재는 제조사에서 추천하는 표면처리제와 접착제를 이용하여 수복하였다.

치아는 교정을 목적으로 발거된 상하악 소구치를 대상으로 하였다. 발치 후 1달 이내의 소구치를 치근에 부착된 연조직을 제거한 후 0.1% thymol 용액에 저장하여 고정시켰다. 이후 실험이 시작되기 전까지 4℃ 냉장 보관하였다.

치면이 건전한 소구치 80개를 골라 임의로 20개씩 4개 군으로 분류하였으며, 불소가 포함되지 않은 퍼미스와 러버컵을 이용하여 치면세마하였다. 협면의 치경부 1/3 부위에 고속핸드피스 #330 버를 이용하여 가로 4 mm, 세로 2 mm, 깊이 2 mm의 5급 와동을 형성하였다. 와동의 표면우각이 90도가 되도록 하였으며, 형성된 와동은 캘리퍼로 크기를 확인 후 와동 형태가 일정하도록 하였다.

각 와동은 제조사의 지시에 따라 상아질 전처리 혹은 산부식 시행 후 접착제를 도포하고, 수복재는 한 번에 충전한 후 할로겐 광조사기(XL 3000™, 3M™ ESPE™, USA)를 이용하여 40 초간 광중합 하였다. 중합 1 시간 뒤 전반적으로 마무리하였으며, Sof-lex™ disc(3M™ ESPE™, USA)를 순차적으로 사용하여 과량의 수복재가 없도록 연마하였다.

충전 및 마무리가 끝난 치아는 치아에 불소가 침투되도록 37℃ 증류수에 30일간 보관하였다. 각 군별로 분리하여 서로 다른 용기에 보관하였으며, 증류수는 매일 교환하였다.

**Table 1.** The filling materials used in each group

Group	Material	Type	Manufacturer	Shade	Composition
FZ	Filtek™ Z250	Composite	3M™ ESPE™, USA	A2	Bis-GMA, UDMA, Bis-EMA, zirconia/silica filler
FF	Fuji Filling™ LC	RMGI	GC, Japan	A2	Paste A: alumino-silicate glass, 2-HEMA, UDMA Paste B: water, polyacrylic acid, UDMA, silicone dioxide
DA	Dyract® AP	Compomer	Dentsply, Germany	A2	Strontium-fluoro-silicate glass, strontium fluoride, TCB resin, UDMA
BF	Beautifil II	Giomer	Shofu, Japan	A2	Bis-GMA, TEGDMA, multi-functional glass filler, S-PRG filler based on fluoroboroaluminosilicate glass

**Table 2.** The Bonding/Coating agents used in each group

Group	Material	Manufacturer	Composition
FZ	Scotchbond™ Etchant	3M™ ESPE™, USA	35% H <sub>3</sub> PO <sub>4</sub>
	Adper™ Single Bond 2	3M™ ESPE™, USA	Bis-GMA, HEMA, silica nanofiller, ethanol, water
FF	Dentin conditioner	GC Corp, Japan	10% polyacrylic acid
DA	Scotchbond™ Etchant	3M™ ESPE™, USA	35% H <sub>3</sub> PO <sub>4</sub>
	Prime & Bond® NT	Dentsply, Germany	PENTA, TEGDMA, Bis-GMA, cetylamine hydrofluoride, acetone, nanofiller
BF	FL Bond II	Shofu, Japan	Primer: water, ethanol, carboxylic acid monomer, phosphoric acid monomer, initiator Bonding agent: S-PRG filler based fluoroboroaluminosilicate glass, UDMA, TEGDMA, 2-HEMA, initiator

2. 연구방법

〈탈회억제 효과의 비교〉

증류수에 보관된 치아 중 군 당 15개씩 임의로 골라 와동 주위 1 mm를 남기고 산에 저항성이 있는 바니쉬를 2회 도포하였다. 도포된 치아는 90 ml의 탈회용액에 각 군 별로 37℃에서 7일간 노출시켰다. 탈회용액은 3.0 mM CaCl<sub>2</sub>, 1.8 mM KH<sub>2</sub>PO<sub>4</sub>와 0.2 M 젖산(lactic acid)을 포함하였으며, 1 M NaOH를 이용하여 pH 4.3으로 조정하여 사용하였다<sup>23)</sup>. 탈회용액은 매일 교환하였다.

탈회가 끝난 치아는 바니쉬를 제거하고, 고속핸드피스 다이아몬드 버를 이용하여 치근을 분리시켰다. 치관만 교정용 아크릴레진에 매몰하였으며, 저속 다이아몬드톱(diamond saw: Isomet™, Buhler, USA)을 이용하여 와동 중심에서 치아장축 방향으로 이등분하였다. 절단면은 #1200, #1500, #2000 순으로 연마페이퍼로 연마한 후, 6 μm, 3 μm, 1 μm 다이아몬드 페이스트를 이용하여 미세연마를 시행하였다.

연마된 시편은 공초점레이저주사현미경(LSM 510 METAMK4, Carl Zeiss, Germany)을 이용하여 40배 배율하에, 488 nm 여기파장(excitation wavelength)을 가진 아르곤레이저 광원 및 505 nm의 롱패스필터(long pass filter)를 사용하여 치아-수복물 계면을 관찰하고 각각의 이미지를 저장하였다.

저장된 이미지는 LSM 이미지 브라우저 프로그램으로 외측 법랑질병변의 깊이(outer lesion depth(이하 OLD))와 탈회억제층(inhibition zone(이하 IZ))의 두께를 측정하여 데이터를 수집하였다(Fig. 1). OLD는 법랑질 표면에 발생한 이차우식의 깊이로, 법랑질-수복물 계면으로부터 100 μm 떨어진 부위에서 레진 표면의 연장선과 탈회된 법랑질병변의 바닥까지의 거리를 측정하였으며, IZ는 수복물 표면으로부터 100 μm 깊이에서 접

착층에 근접한 탈회되지 않은 법랑질의 두께를 측정하였다<sup>24)</sup>. IZ가 형성되지 않은 시편은 wall lesion(이하 WL) 유무에 따라 no effect(이하 NE)와 WL로 분류하였다.

〈불소침투 양상의 관찰〉

증류수에 보관된 20개(군당 5개)의 치아를 치질 내 불소침투 양상 관찰에 이용하였다. 치관만 분리하여 교정용 아크릴레진에 매몰한 후 저속 다이아몬드톱을 이용하여 치아장축 방향으로 두 번 절단하였다. 절단면을 #1200, #1500, #2000 순으로 연마페이퍼로 연마한 후, 6 μm, 3 μm, 1 μm, 0.25 μm, 0.1 μm 다이아몬드 페이스트를 이용하여 미세연마를 시행하였다.

2 mm 두께로 시편을 만들어 건조시킨 후 탄소를 피복하여 전자탐침미세분석기(EPMA 1610, Shimadzu, Japan)를 이용하여 불소침투량을 측정하였다. 각 시편에서 와동측벽의 법랑질과 측벽의 상아질, 두 부위를 측정하였으며, 치아-수복물 계면으로부터 수직으로 치아 내 200 μm 깊이까지 선분석을 시행하였다(Fig. 2). 설정은 가속전압 15 kV, 20 nA 조건에서 1 μm 크기의 빔을 사용하였다.

3. 통계 분석

모든 자료는 통계분석용 소프트웨어인 SPSS 14.0 프로그램(SPSS Inc., USA)을 이용하여 분석하였다. 공초점레이저주사현미경으로 관찰된 이미지에서 수집된 데이터 중 OLD과 IZ 두께 값의 군별 차이는 일원변량분석법(one-way ANOVA)을 이용하여 분석하였고, 군간 유의한 차이가 있을 경우 Tukey의 다중비교법(Tukey's multiple comparison test)으로 사후검정하였다. 또한 IZ, NE, WL의 발생 빈도에 대하여 카이제곱법(Chi-square test)으로 분석하였다. 모든 통계 분석에서 유의성 판정을 위한 유의수준은 5%로 하였다.

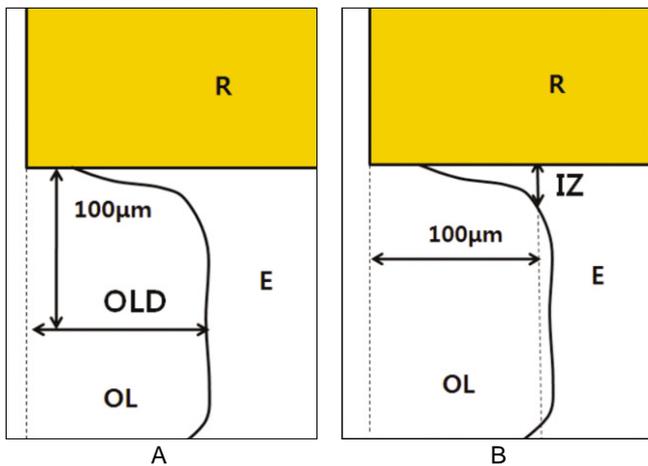


Fig. 1. Measurements of the depth of outer lesion(OLD)(A), and the thickness of inhibition zone(IZ)(B). R: restorative material, E: enamel, OL: outer lesion.

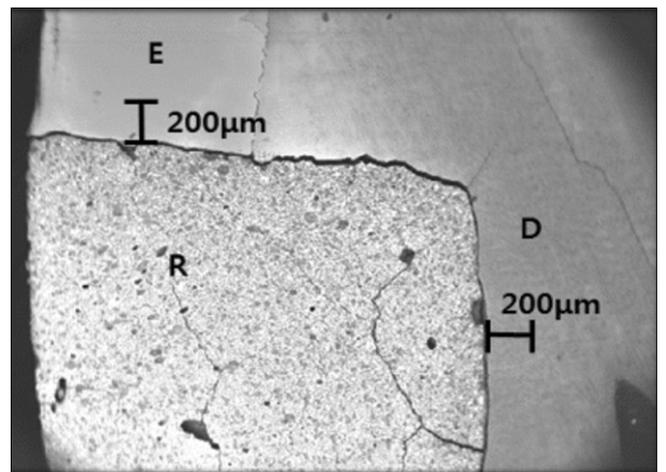


Fig. 2. Black lines show the typical scanning range and the position of line analysis. E: enamel, D: dentin, R: restorative material.

Ⅲ. 연구결과

1. 탈회억제 효과에 대한 평가

Table 3은 각 군의 탈회 후 형성된 OLD와 IZ의 두께를 보여 준다. OLD의 경우 평균값을 비교했을 때 FZ 군에서 가장 크게 나타났으며, BF의 OLD가 가장 작게 나타났다(p<0.05). DA, FF 간에는 큰 차이가 나타나지 않았다. IZ의 두께는 FZ 군이 가장 작게 나타났으며, FF, DA, BF 세 군 간에는 큰 차이를 보이지 않았다(p<0.05).

Fig. 3은 각 군의 대표적인 공초점레이저주사현미경 이미지이다. 모든 군에서 외측 법랑질 탈회병변이 관찰되었으며, 불소를 방출하는 FF, DA, BF 군의 IZ가 FZ 군에서보다 두껍고 분명하게 관찰되었다. WL이 발생한 시편도 간혹 발견되었으나

대부분의 시편에서 탈회억제층이 관찰되었다. IZ 발생 빈도는 FZ 군에서 가장 낮았으며, FZ 군내에서는 NE가 가장 높은 빈도로 나타났다(p<0.05). FF, DA, BF의 경우 IZ가 70% 이상을 차지했으며, 군 간의 NE, WL 빈도 또한 큰 차이를 보이지 않았다.

Table 4는 각 군에서 IZ와 NE, WL이 형성된 비율을 보여준다. FZ 군을 제외한 나머지 세 군 모두 11개의 시편에서 IZ가 관찰되었으며, DA 군에서는 WL이 관찰되지 않았다. FZ 군에서 NE의 빈도가 가장 높았다(p<0.05).

2. 불소 침투 양상의 비교 평가

각 군별로 3개의 시편에 대해 측정된 불소 농도의 평균값을 비교하였다(Fig. 4, 5).

법랑질 내의 불소침투 양상을 관찰한 결과 대조군인 FZ 군에

**Table 3.** Mean outer lesion depth(OLD) and the thickness of inhibition zone(IZ)( $\mu\text{m} \pm \text{SD}$ )

Group	OLD	IZ thickness
FZ	146.11 $\pm$ 11.09 <sup>a</sup>	2.35 $\pm$ 5.49 <sup>a</sup>
FF	107.07 $\pm$ 13.49 <sup>b</sup>	13.56 $\pm$ 7.25 <sup>b</sup>
DA	119.54 $\pm$ 9.03 <sup>b</sup>	18.85 $\pm$ 7.81 <sup>b</sup>
BF	109.28 $\pm$ 12.30 <sup>c</sup>	16.62 $\pm$ 8.30 <sup>b</sup>
<sup>†</sup> p-value	<.001*	<.001*

<sup>†</sup>p-value is determined by one-way ANOVA.

\* p<0.05

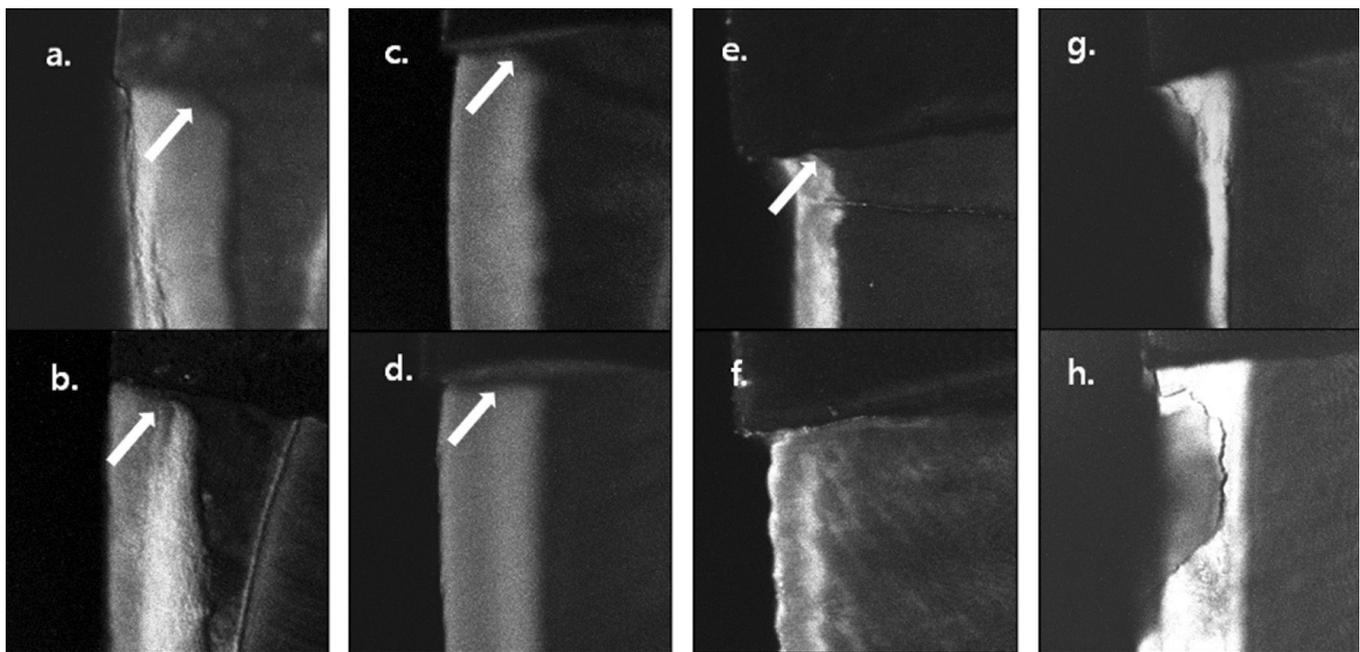
<sup>abc</sup> Different letters in each column indicate statistical significance among groups by Tukey's test at p<0.05

**Table 4.** Frequency of IZ/NE/WL formation(No(%))

Group	IZ	NE	WL	Total
FZ	3(20.00)	9(60.00)	3(20.00)	15(100)
FF	11(73.33)	2(13.33)	2(13.33)	15(100)
DA	11(73.33)	4(26.67)	0(0.0)	15(100)
BF	11(73.33)	3(20.00)	1(6.67)	15(100)
<sup>†</sup> p-value		0.019*		

<sup>†</sup>p-value was calculated by Chi-square test.

\* p<0.05



**Fig. 3.** Typical CLSM images of the lesions in enamel margins of cavities restored with various materials( $\times 40$ ). a,b= FF group, c,d= DA group, e,f= BF group, g,h=FZ(control) group. White arrows indicate demineralization inhibition zone at the enamel-restoration margins. f. shows wall lesion at the margin. g. and h. show no effect at the margin.

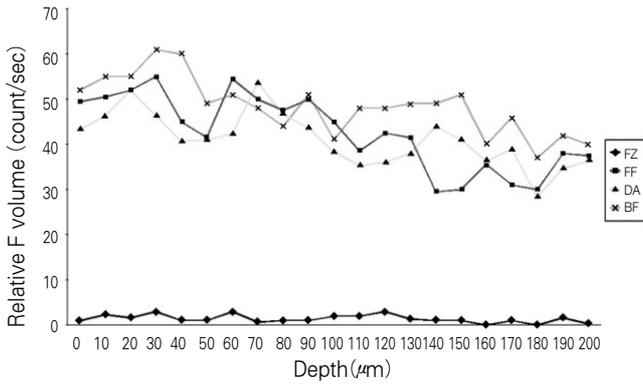


Fig. 4. Relative fluoride concentration of each group in enamel.

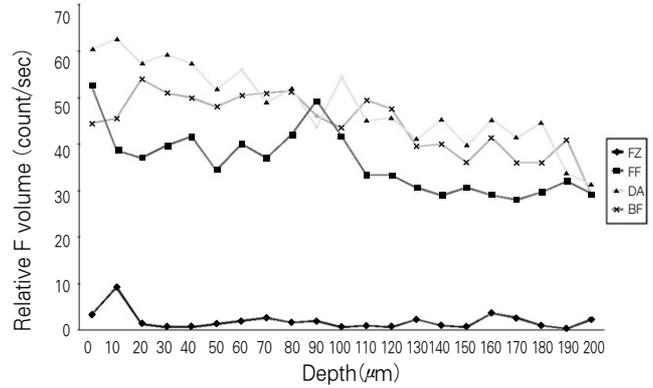


Fig. 5. Relative fluoride concentration of each group in dentin.

서는 불소가 거의 나타나지 않았으며, FF, DA, BF 군에서 FZ 군보다 훨씬 높은 불소농도를 보였다. FF, DA, BF 군 모두 깊이 에 따라 불소농도가 낮아지는 양상을 보였으며, 세 군 간의 불소농도는 큰 차이를 보이지 않았다. DA의 불소농도의 감소 기울기가 가장 완만하였으며, 200 µm 깊이에서 불소를 방출하는 세 군 모두 유사한 불소농도를 보였다.

상아질 내에서도 법랑질과 마찬가지로 FZ 군에서는 불소가 거의 나타나지 않았다. 법랑질에서와는 달리 FF, DA, BF 군 간에 불소농도 차이가 더 크게 나타났으며, 전반적으로 DA, BF, FF의 순으로 불소 농도가 높게 나타났다. 세 군 모두 깊이에 따라 불소농도가 낮아지는 양상을 보였으나, FF의 경우 다른 군에 비해 그 기울기가 완만하게 나타났다.

IV. 총괄 및 고찰

많은 *in vitro* 연구들에서 탈회용액 혹은 겔을 이용하여 인공적인 이차우식을 형성시켜 불소방출 재료들의 우식억제 효과를 보여주었으며<sup>11,13,15,25,26</sup>, 탈회된 부위는 조직병리학적으로 실제 초기 이차우식과 유사하다고 하였다<sup>27,28</sup>. 본 연구에서는 불소를 방출하는 광중합 수복재들의 우식억제 효과를 알아보기 위해 산성용액을 이용하여 이차우식과 유사한 탈회를 유발하였으며, 그 양상을 공초점레이저주사현미경을 이용하여 관찰하였다.

공초점레이저주사현미경은 조직에서 자체적으로 발광되는 형광을 감지할 수 있으며, 최근 우식이 있는 치아조직의 범위 등을 관찰하는 데에 많이 사용되고 있다<sup>29-31</sup>. 편광현미경 혹은 미세방사선사진 관찰과는 달리 얇은 시편제작이나 시편의 건조 및 염색이 필요하지 않아 시편제작 및 관찰이 용이하며, 시편의 손상으로 인한 기술적인 오차를 최소화할 수 있다는 장점을 가진다<sup>32,33</sup>.

관찰된 이미지의 분석 결과 OLD는 FZ 군이 나머지 세 군보다 크게 나타났으며, 불소를 방출하는 세 군 중 BF 군이 가장 작은 OLD를 보였다. Attar 등<sup>25</sup>은 글라스아이오노머, 콤포머, 콤포짓으로 수복하여 15주간 산성 환경에 노출시킨 후 인공이차우식을 평가한 결과 불소를 방출하지 않는 콤포짓보다 글라

스아이오노머, 콤포머 군에서 OLD가 더 크게 나타났다고 하였다. Hicks 등<sup>34</sup>은 레진강화형글라스아이오노머와 콤포짓을 이용한 *in vitro* 우식억제 연구에서 레진강화형글라스아이오노머의 OLD가 콤포짓의 OLD보다 작게 나타났다고 하였다. 이들의 연구결과는 본 실험의 결과와 유사하나 이에 반하는 연구결과들<sup>35,36</sup>도 있다. Gonzalez 등<sup>37</sup>은 글라스아이오노머, 레진강화형글라스아이오노머, 콤포머, 콤포짓을 이용한 수복물 주위 인공이차우식을 평가한 결과 상아질 상에서는 OLD 값이 군간 차이를 보였으나, 법랑질 상에서는 큰 차이를 보이지 않았다고 하였다. 이와 같은 차이는 인공우식형성 방법, 재료조성의 차이에 기인하는 것으로 보이며, 치아를 이용하는 실험의 특성 상 표준화가 어렵기 때문이라고 볼 수 있다. 본 연구에서 OLD 평균값을 비교했을 때 편차가 크게 나타난 것 또한 각 치아의 탈회되는 양상을 표준화시키기 어려웠기 때문인 것으로 보인다.

이번 실험 결과 OLD의 차이는 증류수에 저장되어 있는 동안 수복물에서 증류수로 유리된 불소에 의해 법랑질 표면 전체가 영향을 받아 나타난 것으로 생각된다. 불소를 방출하는 세 군 중 BF가 가장 작게 나타난 것으로 보아, 실제 수복물에서 방출되는 불소의 양이 레진강화형글라스아이오노머인 FF와 유사하거나 더 많은 것으로 추측된다.

이차우식 억제를 실험한 많은 연구들에서 탈회억제층(IZ)이 언급된 바 있으며, 수복물의 우식억제 효과를 IZ의 두께, 길이 혹은 면적을 통해 평가하였다<sup>25,31,33,36,38-40</sup>. 본 연구에서는 다른 방법에 비해 편차가 작게 나타나는 IZ의 두께를 평가하였다. 그 결과 FZ 군을 제외한 군에서 시편의 15개 중 11개에서 IZ가 나타났으며, 그 세 군 간에 IZ의 두께는 큰 차이를 보이지 않았다.

또한 불소가 포함되지 않은 FZ와 Adper™ Single Bond 2를 사용한 대조군 중 일부 시편에서도 IZ가 관찰되었다. 이미 여러 연구에서 불소가 유리되지 않는 접착제 혹은 수복재를 사용하더라도 IZ가 형성될 수 있다는 사실이 보고된 바 있으며, 혼성층 자체로서 산에 저항성을 보이기 때문에 IZ가 나타난다고 하였다<sup>41,42</sup>. Tsuchiya 등<sup>43</sup>은 산에 노출된 후 형성되는 IZ는 접착층에 근접하여 형성되며, 어느 정도 수복물 혹은 접착제에서 유리되는 불소의 양과 연관된다고 하였으나, 주로 혼성층의

질에 따라 좌우된다고 하였다.

본 실험에 사용된 불소방출 수복재들의 불소방출량은 레진강화형글라스아이오노머인 FF가 가장 많은 것으로 알려져 있으며<sup>44)</sup>, 그다음은 BF로 불소방출 접착제인 FL Bond II와 함께 사용되었을 때 글라스아이오노머와 유사한 양의 불소를 방출하는 것으로 제조사는 주장한다. 실험군 중 DA가 불소방출량이 가장 작은 것으로 알려져 있으나<sup>45)</sup>, 세 군 간에 IZ 두께에 있어서 큰 차이를 보이지 않았다. 따라서 FF와 BF의 경우 IZ 형성에 있어 불소의 작용이 컸다고 할 수 있으나, DA의 경우 불소의 영향과 함께 양질의 접착계면 형성을 통한 탈회억제 효과도 있을 수 있다고 생각한다. 또 한 가지 고려해야 할 것은 DA 군에 사용된 Prime & Bond® NT에서 미량의 불소가 유리될 수 있다는 것이다. 제조사에서는 Prime & Bond® NT의 불소방출에 대한 언급을 하지 않았으나, Prime & Bond® NT에는 치약에 사용되는 것과 동일한 세틸아민 하이드로플루오라이드(cetylamine hydrofluoride)가 포함되어 있다<sup>46)</sup>. Hara 등<sup>47)</sup>에 의하면 여러 접착제의 불소방출량을 측정된 결과 Prime & Bond® NT의 불소방출량이 글라스아이오노머인 Ketac-fil Plus의 절반 정도로 나타났으며, FZ와 함께 수복하였을 때 탈회억제층이 시편의 56.2%에서 관찰되었다고 하였다. 따라서 Prime & Bond® NT와 DA를 함께 사용하면 불소방출량이 증가할 것으로 판단된다.

본 실험에서는 이차우식에 대한 저항성을 통해 불소의 역할을 간접적으로 확인했을 뿐 아니라 전자탐침미세분석기를 이용하여 치아 내로 실제 침투된 불소를 직접 측정하였다. 치아 내로의 불소침투 양상을 연구하기 위해서는 시편의 손상 없이 불소를 측정할 수 있어야 하는데, 기존에 행해진 연구 방법들<sup>48-50)</sup>은 시편의 모양을 보존할 수 없거나, 특정부위 불소농도 측정 혹은 분포범위 등을 확인 할 수 없었다. 이러한 단점들을 보완한 비파괴적인 연구 방법들로 전자탐침미세분석기과 양자유도감마선방출분석법(Proton-Induced Gamma-ray Emmission Analysis), 이차이온질량분석법(Secondary Ion Mass Spectroscopy) 등이 있다.

본 연구에 사용된 전자탐침미세분석기는 파장분광(Wavelength Dispersive Spectroscopy) 시스템을 이용하여 에너지분광(Energy Dispersive Spectroscopy) 시스템에서는 측정할 수 없는 치아 내 불소와 같은 극소량의 원소를 측정할 수 있었다. 예비실험 과정에서 수복물 주위의 불소 mapping을 시도하였으나 불소의 상대적인 양이 너무 적어 mapping 이미지에서 불소를 식별하기가 거의 불가능하였다. 이에 본 연구에서는 깊이에 따른 선분석만 시행하였다.

전자탐침미세분석기의 분석결과 불소를 방출하는 수복물 주위 법랑질과 상아질로 측정된 깊이인 200  $\mu\text{m}$  깊이까지 불소가 침투되어 있었으며, 200  $\mu\text{m}$  깊이에서도 대조군인 FZ 군보다 불소농도가 훨씬 높은 것으로 보아 200  $\mu\text{m}$  이상 불소가 침투되었으리라 예상된다. 이차이온질량분석법을 이용하여 상아질로의 불소침투 깊이를 측정된 Tam 등<sup>26)</sup>의 연구 결과에 따르면 글라스아이오노머와 레진강화형글라스아이오노머를 수복하고

10주 뒤에 치아-수복물 계면으로부터 수직으로 최대 300  $\mu\text{m}$  까지 불소가 침투되었다고 하였다. 이러한 과거 연구 결과를 바탕으로 본 실험에서는 30일이라는 저장 기간을 고려하여 측정 깊이를 200  $\mu\text{m}$ 로 정하였으나, 실험 결과에서 나타난 불소 농도 감소 기울기로 보아 이후 연구에서 불소 농도를 측정한다면 측정 깊이를 더 깊게 설정해야 할 것으로 보인다.

법랑질 내로 침투된 불소 농도 양상은 이차우식 형성 실험 결과와 어느 정도 연관되는 것으로 보인다. 외부로 방출된 불소에만 영향을 받는 OLD에서 BF군이 가장 작게 나타났는데, 법랑질에 침투된 불소농도 또한 전체적으로 BF군이 가장 높게 나타났다. 이는 IZ 두께 측정 결과와는 약간 다른 양상을 보이는데, 이는 앞서 언급된 IZ에 대한 접착계면의 영향을 뒷받침해준다. 실제 법랑질에 침투된 불소의 양이 많더라도 접착계면이 양호하지 않으면 이차우식에 더 취약해질 수 있을 것이다. 흥미로운 점은 흔히 불소방출량이 글라스아이오노머와 유사하다고 알려진 레진강화형글라스아이오노머 종류인 FF 군의 불소 침투량이 BF 군이나 DA 군과 유사했다는 점이다. 특히 법랑질에서보다 상아질에서의 불소침투량 차이가 큰 것으로 보아 수복재 혹은 접착제의 불소가 상아질로 침투되는 데에 수복물-상아질 계면 형태의 영향이 큰 것으로 생각된다. 전체 산부식(total etching) 시스템의 Prime & Bond® NT를 사용한 DA 군의 불소 농도가 가장 높았던 것은 산부식으로 인해 상아질의 투과성이 증가했기 때문으로 생각되며, 수복물과 긴밀하게 형성된 혼성층을 통과하여 상아질로 불소가 침투되었을 것이다. 반면에 레진강화형글라스아이오노머의 경우 치질에 직접적으로 이온결합을 하며, 광중합 시 레진 성분으로 인해 수축이 일어나게 된다<sup>51)</sup>. 이 과정에서 수축응력이 결합강도를 넘어서게 되면 치질 접착에 실패할 가능성이 있으며, 수복물과 치질 간에 간극이 발생할 수 있다. 본 실험에서 FF의 불소침투 농도가 낮았던 것도 30일 간의 저장 기간을 고려할 때 수복 시 발생한 접착 실패로 인해 상아질 내로의 불소가 확산될 기회가 낮았던 것으로 추측된다.

본 실험의 결과로 미루어 볼 때 불소를 방출하지 않는 콤포짓에 비해 불소를 방출하는 수복재들이 우식예방 효과를 보이는 것으로 판단된다. 특히 자이오머인 BF의 경우 탈회억제 효과와 불소침투 양상 모두에서 레진강화형글라스아이오노머인 FF, 콤포머인 DA와 유사하거나 더 나은 우식예방 효과를 보이는 것으로 나타났다. 또한 레진강화형글라스아이오노머나 콤포머보다 더 나은 물성을 보이므로<sup>22)</sup>, 소아치과 임상에서 수복 시 우선적으로 고려할 만한 수복재라 할 수 있다. 불소를 방출하는 광중합 수복재들의 우식예방 효과를 극대화시키기 위해서는 실제 불소방출량이 많은 수복재를 사용하는 것도 중요하지만, 적절한 접착제를 사용하여 치질과 양호한 접착을 이루는 것이 중요하다 생각된다. 이는 치질로의 불소 확산을 도울 수 있고, 그 자체로써 탈회에 저항성을 보이기 때문이다.

다만, 본 실험의 결과만으로 실제 구강 내 환경에 적용시키기에는 무리가 있다. *In vitro* 실험에서는 구강에서와 같이 생체막(biofilm), 타액, 치은열구액 혹은 상아세판액과 같은 요소를

재현하기 어렵기 때문에 그 결과가 임상에서와 상이할 수 있다. 따라서 *in vivo*와 유사한 환경을 이용한 연구들이 필요할 것으로 생각된다.

## V. 결 론

본 연구는 교정을 목적으로 발거된 상하악 소구치를 대상으로 하여, 자이오머인 Beautifil II (BF)를 포함한 불소를 방출하는 수복재인 Fuji Filling™ LC(FF), Dyract® AP(DA)와 불소를 방출하지 않는 복합레진 Filtek™ Z250(FZ)의 우식억제 효과와 주변 치질로의 불소침투 양상을 비교하기 위하여, 공초점레이저주사현미경과 전자탐침미세분석기를 이용하여 각 수복재의 우식예방 효과를 비교하였으며, 다음과 같은 결과를 얻었다.

1. 수복물 주위에 발생한 이차 인공우식에서 법랑질 외측변연의 깊이는 불소를 방출하지 않는 FZ 군에서 가장 깊었으며, BF 군이 가장 작게 나타났다( $p<0.05$ ).
2. 수복물과 법랑질 계면에 이차우식 유발 후 나타난 탈회역제층의 두께를 관찰한 결과 FZ 군이 가장 작게 나타났으며, 불소를 방출하는 나머지 세 군(FF, DA, BF)간에는 유의성 있는 차이를 보이지 않았다( $p<0.05$ ).
3. 법랑질로 침투된 불소농도를 측정할 결과 FZ 군에서는 불소가 거의 측정되지 않았으며, FF, DA, BF 군에서는 계면으로부터 200  $\mu\text{m}$ 까지 불소가 침투되어 있었다. 깊이에 따라 불소농도가 감소되는 경향을 보여, 깊이 200  $\mu\text{m}$ 에서 농도가 30% 정도 감소되었다.
4. 법랑질로 침투된 불소농도는 불소를 방출하는 세 군 간에 큰 차이를 보이지는 않았으나, BF, FF, DA의 순으로 불소농도가 크게 나타났다.
5. 상아질로 침투된 불소 농도는 법랑질과 거의 유사한 양상을 보였으나, 불소를 방출하는 세 군에서는 DA, BF, FF의 순으로 불소 농도가 크게 나타났으며, 이는 상아질-수복물의 접촉 계면에 영향을 받는 것으로 보인다.

이상의 결과로 보아 불소를 방출하는 수복재(FF, DA, BF)들이 불소를 방출하지 않는 수복재(FZ)와 비교할 때 우식예방 효과가 있는 것으로 보이며, 자이오머인 BF의 우식예방 효과가 FF, DA와 유사하거나 조금 더 우수한 것으로 나타났다. 하지만, 구강 내 환경에서는 더 많은 요소들이 우식형성 및 불소침투에 영향을 줄 수 있으므로, 이후 심도 깊은 연구가 더 필요할 것으로 생각된다.

## 참고문헌

1. Dahl JE, Eriksen HM : Reasons for replacement of amalgam dental restorations. *Scandinavian J Dent Res*, 86:404-407, 1978.
2. Mjör IA : Frequency of secondary caries at various anatomical locations. *Oper Dent*, 10:88-92, 1985.

3. Mjör IA, Toffenetti F : Secondary caries: a literature review with case reports. *Quintessence Int*, 31:165-179, 2000.
4. Arends J, Dijkman G, Dijkman A : Review of fluoride release and secondary caries reduction by fluoridating composites. *Adv Dent Res*, 9:367-376, 1995.
5. Brännström M, Nordenvall KJ : Bacterial penetration, pulpal reaction and the inner surface of concise enamel bond. Composite fillings in etched and unetched cavities. *J Dent Res*, 57:3-10, 1978.
6. Sjudn L, Uusitalo M, Van diken J : Resin-modified glass ionomer cements. In vitro microleakage in direct Class V and Class II sandwich restorations. *Swed Dent J*, 20:77-86, 1996.
7. Yap AU, Lim CC, Neo JC : Marginal sealing ability of three cervical restorative systems. *Quintessence Int*, 26:817-820, 1995.
8. Annette Wiegand, Wolfgang Buchalla, Tomas Attin : Review on fluoride-releasing restorative materials-Fluoride release and uptake characteristics, antibacterial activity and influence on caries formation. *Dent Mater*, 23:343-362, 2007.
9. Creanor SL, Carruther LM, Saunders WP, et al. : Fluoride uptake and release characteristics of glass ionomer cements. *Caries Res*, 28:322-8, 1994.
10. Forsten L. : Short-and long-term fluoride release from glass ionomers and other fluoride-containing filling materials in vitro. *Scand J Dent*, 98:179-85, 1990.
11. Dionysopoulos P, Kotsanos N, Papadogiannis Y, et al. : Artificial secondary caries around two new F-containing restoratives. *Oper Dent*, 23: 81-86, 1998.
12. Retief DH, Bradley EL, Denton JC, et al. : Enamel and cementum fluoride uptake from a glass ionomer cement. *Caries Res*, 18:250-257, 1984.
13. Forss H, Seppa L : Prevention of enamel demineralization adjacent to glass ionomer filling materials. *Scand J Dent Res*, 98:173-178, 1990.
14. Skartveit L, Tveit AB, Totdal B, et al. : In vivo fluoride uptake in enamel and dentine from fluoride containing materials. *J Dent Child*, 57:97-100, 1990.
15. Hicks MJ, Flaitz CM, Silversone LM : Secondary caries formation in vitro around glass ionomer restorations. *Quintessence Int*, 17:527-532, 1986.
16. Tyas MJ : Cariostatics effect of glass ionomer cement: A five-year clinical study. *Aust Dent J*, 36: 236-239, 1991.
17. Varpio M, Noren JG : Artificial caries in primary

- and permanent teeth adjacent to composite resin and glass ionomer cement restorations. *Pediatr Dent*, 16:107-109, 1994.
18. Guggenberger R, May R, Stefan KP : New trends in glass ionomer chemistry. *Biomaterials*, 19:479-483, 1998.
  19. Robertello FJ, Coffey JP, Lynde TA, et al. : Fluoride release of glass ionomer-based luting cements in vitro. *J Prosthet Dent*, 82:172-176, 1999.
  20. Itota T, Carrick TE, Yoshiyama M, et al. : Fluoride release and recharge in giomer, compomer, and resin composite. *Dent Mater*, 20:789-795, 2004
  21. Ikemura K, Tay FR, Endo T, et al. : A review of chemical-approach and ultramorphological studies on the development of fluoride-releasing dental adhesives comprising new pre-reacted glass ionomer(PRG) fillers. *Dent Mater J*, 27:315-339, 2008.
  22. Yap AU, Wang X, Wu X, et al. : Comparative hardness and modulus of tooth-colored restoratives: a depth-sensing microindentation study. *Biomaterials*, 25:2179-2185, 2004.
  23. Okuyama K, Nakata T, Pereira PNR, et al. : Prevention of artificial caries:Effect of bonding agent, resin composite and topical fluoride application. *Oper Dent*, 31:135-142, 2006.
  24. Itota T, Nakabo S, Narukami T, et al. : Effect of two-step adhesive systems on inhibition of secondary caries around fluoride-releasing resin composite restorations in root dentine. *J Dent*, 33:147-154, 2005.
  25. Attar N, Onen A : Artificial formed caries-like lesions around esthetic restorative materials. *J Clin Pediatr Dent*, 26:289-296, 2002.
  26. Tam LE, Chan GP, Yim P : In vitro caries inhibition effects by conventional and resin-modified glass-ionomer restorations. *Oper Dent*, 22:4-14, 1997.
  27. Hicks MJ, Silverstone LM : Fissure sealants and dental enamel: a histological study of microleakage in vitro. *Caries Res*, 16:353-360, 1982.
  28. Kidd EAM, Siverstone LM : Remineralization in vitro of artificial caries-like lesions produced in relation to amalgam restorations. *Caries Res*, 12:238-242, 1978.
  29. Banerjee A, Boyde A : Autofluorescence and mineral content of carious dentine: scanning optical and backscattered electron microscopic studies. *Caries Res*, 32:219-226, 1998.
  30. Banerjee A, Sherriff M, Kidd EAM, et al. : A confocal microscopy study relating the autofluorescence of carious dentine to its microhardness. *Br Dent J*, 187:206-210, 1999.
  31. van der Veen MH, ten Bosch JJ : The influence of mineral loss on the auto-fluorescent behavior of in vitro demineralized dentine. *Caries Res*, 30:93-99, 1996.
  32. 박성호 : 수복용 compomer의 항우식성에 관한 연구. *대한치과보존학회지*, 27:12-15, 2002.
  33. Pioch T, Stotz S, Staehle HJ, et al. : Applications of confocal laser scanning microscopy to dental bonding. *Adv Dent Res*, 11:453-461, 1997.
  34. Hicks MJ, Flaitz CM : Resin-modified glass-ionomer restorations and in vitro secondary caries formation in coronal enamel. *Dent Mater*, 31:570-578, 2000.
  35. Dunne SM, Goolnik JS, Millar BJ, et al. : Caries inhibition by a resin-modified and a conventional glass ionomer cement, in vitro. *J Dent*, 24:91-94, 1996.
  36. Millar BJ, Abiden F, Nicholson JW : In vitro caries inhibition by polyacid-modified composite resins("compomers"). *J Dent*, 26:133-136, 1998.
  37. Gonzalez EH, Yap AUJ, Hsu SCY : Demineralization inhibition of direct tooth-colored restorative materials. *Oper Dent*, 29:578-585, 2004.
  38. Donly KJ, Grandgenett C : Dentin demineralization inhibition at restoration margins of vitremer, Dyract and Compoglass. *Am J Dent*, 11:245-248.
  39. Hicks J, Garcia-Godoy F, Milano M, et al. : Compomer materials and secondary caries formation. *Am J Dent*, 13:231-234, 2000
  40. Okuda M, Pereira PNR, Nikaido T, et al. : Evaluation of in vitro secondary caries using confocal laser scanning microscope and X-Ray analytical microscope. *Am J Dent*, 16:191-196.
  41. Itota T, Nakabo S, Iwai Y, et al. : Inhibition of artificial secondary caries by fluoride-releasing adhesives on root dentin. *J Oral Rehabil*, 29:523-527, 2002.
  42. Shinohara MS, Yamauti M, Inoue G, et al. : Evaluation of antibacterial and fluoride-releasing adhesive system on dentin microtensile bond strength and acid-base challenge. *Dent Mater J*, 25:545-552, 2006.
  43. Tsuchiya S, Nikaido T, Sonoda H, et al. : Ultrastructure of the dentine-adhesive interface after acid-base challenge. *J Adhes Dent*, 6:183-90, 2004.

44. Yap AU, Tham SY, Zhu LY, et al. : Short-term fluoride release from various aesthetic restorative materials. *Oper Dent*, 27:259, 265, 2002.
45. Attar N, Önen A : Fluoride release and uptake characteristics of aesthetic restorative materials. *J Oral Rehabil*, 29:791-798, 2002.
46. Kirsten L. Van Landuyt, Johan Snauwaert, et al. : Systemic review of the chemical composition of contemporary dental adhesives. *Biomaterials*, 28:3757, 3785, 2007.
47. Hara AT, Queiroz CS, Freitas PM, et al. : Fluoride release and secondary caries inhibition by adhesive systems on root dentine. *Eur J Oral Sci*, 113:245-250, 2005.
48. 정희민, 김용기 : 수종의 구강 위생 방법에 따른 인공 초기 우식 법랑질의 재석회화에 관한 비교 생체 연구. *대한소아치과학회지*, 18:94-116, 1991.
49. 김정옥 : 불소방출 치면열구전색제의 항우식 효과에 관한 실험적 연구. *대한소아치과학회지*, 25:849-857, 1998.
50. Kawai K, Tantbirojn D, Kamalawat AS, et al. : In vitro enamel and cementum fluoride uptake from three fluoride-containing composites. *Caries Res*, 32:463-469, 1998.
51. Pereira PN, Yamada T, Inokoshi S, et al. : Adhesion of resin-modified glass ionomer cements using resin bonding systems. *J Dent*, 26:479-485, 1998.

## Abstract

## IN VITRO STUDY OF DEMINERALIZATION INHIBITION EFFECT AND FLUORIDE UPTAKE INTO ADJACENT TEETH OF LIGHT-CURED FLUORIDE-RELEASING RESTORATIVES

Song-Yi Kim, Sung-Chul Choi, Kwang-Chul Kim, Yeong-Chul Choi, Jae-Hong Park

*Department of Pediatric Dentistry, School of Dentistry, Kyung-Hee University*

The purpose of this study was to evaluate the effect of light cured fluoride-releasing materials on the inhibition of demineralization. In addition, the pattern of fluoride uptake of adjacent tooth structure was analyzed with EPMA.

Eighty intact premolars were restored with Filtek™ Z250(control group, composite), Fuji Filling LC™(RMGI), Dyract AP®(compomer) and Beautifil II(giomer). Restored teeth were stored in distilled water for 30 days. Then sixty teeth(n=15) were exposed to demineralizing solution(pH 4.3). Demineralized teeth were bisected and polished. The specimens were observed with confocal laser scanning microscope. The depth of outer lesion and the thickness of inhibition zone were measured. Remained twenty teeth(n=5) were bisected for fluoride uptake analysis. The fluoride analysis were taken at enamel-restoration interface and dentin-restoration interface by electron probe micro-analyzer.

The results are as follows:

1. The depth of outer lesion of Fuji Filling LC™, Dyract AP, Beautifil II was shallower than that of Filtek™ Z250 at the margin of restoration(p<0.05).
2. The thickness of caries inhibition zone of Fuji Filling LC™, Dyract AP, Beautifil II was greater than that of Filtek™ Z250 at the margin of restoration(p<0.05).
3. Fuji Filling LC™, Dyract AP, Beautifil II groups showed the greater fluoride uptake into enamel and dentine around restoration than Filtek™ Z250 group.
4. In dentin the difference of fluoride concentration were greater than in enamel, and Dyract AP showed the greatest fluoride concentration in dentin.

**Key words** : Giomer, Fluoride-releasing materials, Electron probe micro-analyzer(EPMA), Confocal laser scanning microscope(CLSM)