

인산전처리된 법랑질에 2-단계 자가 부식 접착제의 프라이머 도포가 복합 레진과의 결합강도에 미치는 효과

김지훈, 임호남 *

경희대학교 치의학전문대학원 치과재료학교실 및 치과재료개발시험센터

Effect of Primer in Two step Self-etching Adhesives on the bond strength between Pre-etched Enamel and a Composite

Jee-Hoon Kim, Ho-Nam Lim *

Department of Dental Materials, Division of Dentistry, Graduate School, Kyung-Hee University, Seoul, Korea

(Received: Nov. 22, 2013; Revised: Dec. 22, 2013; Accepted: Dec. 22, 2013)

ABSTRACT

The purpose of this study was to evaluate the composite-to-enamel bond of two step self-etching adhesive systems on pre-etched enamel with and without the application of their primers.

The enamel of 80 bovine incisors was ground(600-grit SiC paper) flat and randomly divided into eight groups(n = 20). After 15 sec phosphoric acid(PA) pre-etching, the enamel was bonded with UniFil Bond(GC) or Clearfil SE Bond(Kuraray) according to manufacturer's instructions or without primer. The shear bond strengths were measured before and after thermocycling(5000 times). For evaluation of resin tag penetration and average roughness(Ra), extra specimens were observed under SEM and optical surface roughness tester.

Priming the pre-etched enamel led to the formation of more shallow resin tags and reduced the value of Ra. The use of primer of self-etching adhesives did not affect the shear bond strength ($p>0.05$) Thermocycling did not affect the shear bond strength ($p>0.05$)

Key words: Enamel, Pre-etching, Primer, Self-etching adhesive

서 론

1955년 Buonocore에 의해 법랑질 산부식이 도입되어 치아 경조직에 레진 접착이 가능해진 이래로 레진 접착제는 많은 변화와 발전을 거듭해왔다(Buonocore, 1955). 초기의 인산 산부식을 이용한 3-단계 접착제는 법랑질과 상아질에서 우수한 접착능력을 갖는 것이 입증되었다(Pashley DH, 1984). 하지만 사용과정에 단계가 많아 번거로웠다. 또한 상아질 접착시 레진 단량체를 더 잘 침투시키기 위해서는 산부식된 상아질의 교원섬유망이 붕괴되는 것을 막아야 했고 이때 필요한 습윤접착술(moist bonding technique³⁾은 술식에 민감한 단점이 있었다

(Gallo등, 2000).

접착과정에서의 단계를 줄이기 위해 단순화된 접착시스템이 개발되었다. 근래에는 자가 부식 접착제(self-etching adhesives)가 널리 쓰이고 있다. 전통적인 산부식, 수세를 이용한 접착에서 32%-40% 인산을 이용한 반면 자가 부식 접착제는 카르복시기나 인산기를 가지는 친수성의 기능성 단량체를 이용한다. 자가 부식 접착제의 pH에 따라 mild, moderate, acidic으로 분류하고 적용 단계의 수에 따라 1단계와 2단계로 분류된다. 자가 부식 접착제는 친수성 산성 단량체를 이용하여 접착과정에서 인산 산부식 과정을 생략할 수 있게 되었다(Miyazaki 등, 2002). 또한 산부식과 침투가 동시에 이루어져 습윤접착술 같은 민감한 술식을 극복할 수 있게 되어 보다 적은 단계로 짧은 시간을 들여 안정적인 접착이 가능해졌다.

* 교신저자 : 서울특별시 동대문구 회기동 1번지 경희대학교 치의학전문대학원 치과재료학교실, 임호남
Tel : 02-961-0353, E-mail : cdm@khu.ac.kr

자가 부식 접착제는 상아질에서 높은 결합강도를 갖는 것으로 보고되었다(Tay 등, 2000). 하지만 여러 연구에서 자가 부식 접착제는 법랑질, 특히 온전한 법랑질에서 낮은 결합강도를 보였다(Ibarra 등, 2002). 이것은 자가 부식 접착제가 인산에 비해 높은 pH를 가져 접착에 충분한 구조를 만들지 못하기 때문이다. 보다 강한 법랑질 접착을 위해 다양한 방법이 시도되었다. 표면을 삭제하여 내부 법랑질을 노출시키거나(Kanemura 등, 1999) 자가 부식 프라이머의 적용시간을 길게 하는 등(Itou 등, 2001) 다양한 시도가 있었다. 하지만 법랑질을 미리 인산으로 산부식 하는 방법이 가장 효과적인 것으로 보고되었다(Miguez 등, 2003).

법랑질과 상아질은 복합레진과의 결합에 매우 다른 양상을 보인다. 이것은 법랑질과 상아질의 매우 다른 조성 차이에 기인한다(McGuckin 등, 1994). 법랑질은 95%-98%의 무기질로 이루어진 반면 상아질은 75%의 무기질과 다른 단백질, 수분 등으로 이루어져 있다. 법랑질 접착은 산부식으로 만들어진 거친 구조에 낮은 점도의 레진이 흘러들어가 광중합되어 만들어진다. 반면 상아질 접착은 HEMA(hydroxy ethyl methacrylate), BPDPM(biphenyl dimethacrylate), 4-META(4-methacryloxy ethyl trimellitate anhydride) 등으로 구성된 프라이머가 필요하다. 이것들은 두 개의 작용기를 가지는데 친수성 부분은 젖은 상아질과 소수성 부분은 레진과 반응한다. 산부식되어 노출된 교원섬유망에 프라이머가 침투하고 이후에 도포된 낮은 점도의 레진과 중합되어 레진과 상아질이 결합되게 된다.

산부식된 법랑질 표면에 상아질 프라이머의 적용이 결합강도에 미치는 영향은 다양하게 보고된 바 있다. Hayakawa 등(1992)은 약산인 0.5M EDTA로 법랑질을 산부식한 경우 프라이머의 적용이 결합력을 증가시켰지만 강산인 40% 인산으로 법랑질을 산부식한 경우 프라이머의 적용이 결합력에 영향을 미치지 않았다고 보고하였다. Barkmeier 등(1994)은 법랑질을 10% 말레산으로 산부식한 경우 프라이머의 적용이 결합력을 감소시켰지만 37% 인산을 이용한 경우 결합력이 감소하지만 통계적으로 유의하지는 않다고 보고했다. Hadavi 등(1993)은 네 가지 상아질 프라이머를 적용한 결과 전단결합강도가 31-44% 감소했다고 보고했다. McGuckin 등(1993)과 Thomas 등(1994)은 여러 종류의 프라이머를 적용해본 결과 재료의 종류에 따라 결합력이 증가하기도 감소하기도 한다고 결론지었다.

자가 부식 접착제는 친수성 산성 단량체를 이용하여 산부식과 프라이머의 역할을 동시에 수행하게 된다. 법

랑질에 복합레진을 접착할 때 결합강도를 증가시키기 위해 인산으로 전처리를 하고 자가 부식 접착제의 프라이머를 적용하는 것은 total etching 접착시에 법랑질에 상아질 프라이머를 적용하는 것과는 다른 양상을 보일 가능성이 있다.

Miguez 등(2003)은 자가 부식 접착제의 법랑질 결합에 산부식 전처리 효과에 관한 논문에서 인산으로 전처리된 법랑질에서 2단계 자가 부식 접착제의 프라이머를 적용한 군과 생략한 군의 결합강도는 유의한 차이가 없다고 보고하였다. 반면 Andreas 등(2013)은 인산 전처리된 법랑질에 자가 부식 접착제의 프라이머 도포는 프라이머를 생략한 것보다 낮은 결합강도를 보인다고 하였다.

따라서 본 실험에서는 인산으로 전처리된 법랑질에 2단계 자가 부식 접착제의 프라이머의 적용 유무에 따른 영향을 알아보기 위해 전단결합강도를 측정하였으며, 내구성에 미치는 영향을 확인하기 위하여 thermocycling을 시행하여 전단결합강도를 측정하였다. 또한 인산 산부식된 법랑질과 자가 부식 접착제의 프라이머가 도포된 법랑질에 레진의 침투 양상의 차이를 확인하기 위하여 SEM 사진을 분석하였고 광학식거칠기측정기를 이용하여 거칠기의 변화를 관찰하였다.

재료 및 방법

1. 실험재료

시편의 제작에는 건전한 소의 치아를 사용하였다.

법랑질의 인산 전처리를 위한 산부식에는 37% 농도의 CharmEtch (DenKist Inc., Korea)를 사용하였다. 접착제는 2단계 자가 부식 접착제인 Clearfil SE Bond (Kuraray Medical Inc., Okayama, Japan)과 UniFil Bond (GC Corporation, Tokyo, Japan)를 사용하였다. 사용된 자가 부식 접착제의 성분은 Table 1.에 정리하였다. 복합레진은 Filtek Z250 (3M ESPE Dental Products, St. Paul, MN, USA)을 사용하였다. 각 단계의 광중합을 위한 광조사기는 DEMI (Kerr Co., USA)를 사용하였다.

준비된 시편의 레진침투 양상을 관찰하기 위해서 FE-SEM (전계방사형 전자현미경, Field emission scanning electron microscope, LEO SUPRA 55, Carl Zeiss, Germany)을 이용하였다. 준비된 시편의 침투된 레진의 거칠기를 측정하기 위해서 광학식 표면조도기 (Optical Surface Roughness Tester, Wyko NT8000, Veeco, USA)를 이용하였다. Thermocycling 실험에는 Thermocycling

Table 1. The components of Self-etching adhesives used in this study

Clearfil SE Bond KURARAY, Japan	Primer	HEMA, hydrophilic dimethacrylate, 10-methacryloyloxydecyl dihydrogen phosphate, n,n-diethanol-p-toluidine, CQ, water
	Bonding	silanated colloidal silica, BIS-GMA, HEMA, hydrophobic aliphatic dimethacrylate, 10-MDP, n,n-diethanol-p-toluidine, CQ
UniFil Bond GC Corporation, Japan	Primer	4-MET, ethanol, DW, HEMA, Initiator
	Bonding	UDMA, TEGDMA, silica filler, Initiator

Table 2. Classification of groups

Groups	Self-etching adhesives	Acid etching	Primer	Thermocycling
1 UPB	UniFil Bond	yes	yes	no
2 UB	UniFil Bond	yes	no	no
3 SPB	Clearfil SE bond	yes	yes	no
4 SB	Clearfil SE bond	yes	no	no
5 UPBT	UniFil Bond	yes	yes	yes
6 UBT	UniFil Bond	yes	no	yes
7 SPBT	Clearfil SE bond	yes	yes	yes
8 SBT	Clearfil SE bond	yes	no	yes

machine (CDM-127, Kyung Hee Univ., Korea)을 이용하였다. 전단결합강도의 측정에는 만능시험기(4467, Instron Co., USA)를 이용하였다.

2. 실험방법

1) 시편의 제작 및 실험군 분류

건전한 소의 치아 160개를 선택하여 폴리에스터 레진에 포매하여 직경 1.5 cm, 높이 2 cm의 레진 블록이 되도록 하였고 사용할 때까지 물에 담가 냉장보관하였다. 레진 블록에 포매된 치아의 순면 법랑질을 주수하에 회전 절삭기를 이용하여 노출시켰다. 법랑질의 일정한 표면상태를 형성하기 위하여 600 grit SiC paper로 연마하였다. 이때 결합강도 측정 시 정확한 값을 얻을 수 있도록 블록의 면을 직각으로 연마하였다.

시편들은 사용한 자가 부식 접착제, 프라이머의 적용 유무, thermocycling 유무에 따라 20개씩 8개 군으로 분류하였고 다음과 같이 처리하였다 (Table 2).

2) 본딩제 및 콤포짓의 적용

모든 시편은 법랑질을 수세 건조시킨 후 37% 인산으로 15초 동안 전처리를 시행하였고 세척 후 air syringe로 건조하였다.

(1) 1군 UPB

전처리 된 법랑질 표면에 제조사의 지시에 따라

UniFil Bond의 프라이머 도포하고 20초간 기다렸다가 air syringe로 가볍게 건조하였다. 이후 본딩제를 적용하고 air syringe로 가볍게 붙여 법랑질 표면에 충분히 퍼지도록 하였다. 이후 10초간 광조사 하였다.

(2) 2군 UB

UniFil Bond의 프라이머 적용단계를 생략하고 1군과 동일하게 처리하였다.

(3) 3군 SPB

전처리 된 법랑질 표면에 제조사의 지시에 따라 Clearfil SE Bond의 프라이머 도포하고 20초간 기다렸다가 air syringe로 가볍게 건조하였다. 이후 본딩제를 적용하고 air syringe로 가볍게 붙여 법랑질 표면에 충분히 퍼지도록 하였다. 이후 10초간 광조사 하였다.

(4) 4군 SB

Clearfil SE Bond의 프라이머 적용단계를 생략하고 3군과 동일하게 처리하였다.

(5) 5군 UPBT

1군과 동일하게 처리한 후 콤포짓을 적용하여 Thermocycling을 시행하였다.

(6) 6군 UBT

2군과 동일하게 처리한 후 콤포짓을 적용하여 Thermocycling을 시행하였다.

Table 4. Average roughness (Ra) values of treated enamel surfaces(Unit: nm)

	SB	SPB	UB	UPB
Mean (SD)	1167 (99)	616 (94)	1157 (224)	788 (128)

(7) 7군 SPBT

3군과 동일하게 처리한 후 콤포짓을 적용하여 Thermocycling을 시행하였다.

(8) 8군 SBT

4군과 동일하게 처리한 후 콤포짓을 적용하여 Thermocycling을 시행하였다.

본딩 처리한 면에 직경 3mm의 구멍을 형성한 마스킹 비닐을 부착하고 그 위에 3.2(±0.1)mm의 내경을 가진 stainless steel 금속링을 위치시킨 후, Filtek Z250 A2 shade로 충전하고 20초간 광조사하여 중합시켰다.

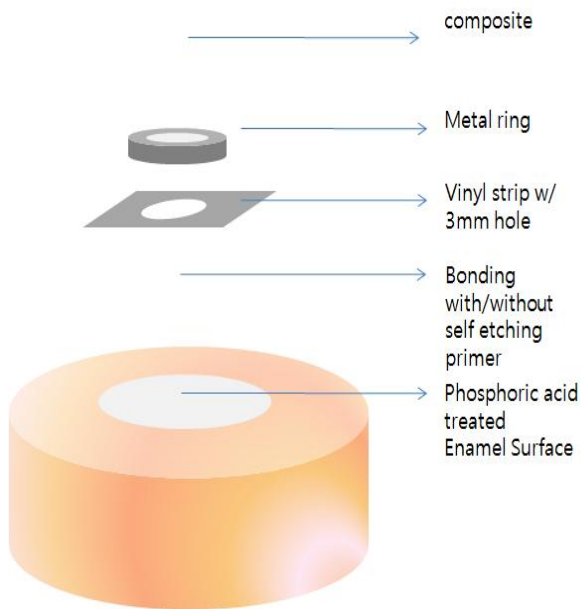


FIGURE 1. Schematic diagram of specimen preparation.

3) Thermocycling

Thermocycling machine을 이용하여 UPBT, UBT, SPBT, SBT의 시편을 5 ℃ 와 55 ℃ 수조에 각각 30초씩 침지시키는 열순환을 5,000 회 반복하였다.

4) 전단결합강도의 측정

시편을 24시간 동안 37±1℃의 수조에서 침지 후 전단 결합강도를 측정하였다. 전단결합강도의 측정은 만능시험기에서 접착면에 일치하는 평면을 따라 하중을 분당 1mm 속도로 가하였을 때 기록기에 나타나는 최대하중을 접착면적으로 나누어 결합강도로 측정하였고, 실험은 각 군당 20개의 치아를 사용, 측정하여 얻어진 평균을 각 실험군의 전단결합강도로 하였다. 측정되어진 값은 다음의 공식에 의해 MPa단위로 환산하였다.

$$\text{Shear bond strength } \tau = 4F / \pi d^2$$

F : load(N), d : diameter of the specimen(mm)

5) 주사전자 현미경 관찰 및 표면거칠기

본딩 과정에서 법랑질 표면에 레진이 침투한 양상을 관찰하기 위하여 1군에서 4군까지의 방법과 동일한 방법으로 각 조건 당 4개씩 16개의 시편을 추가적으로 제작하였다. 제작된 시편은 염산으로 법랑질이 완전히 용해될 때까지 처리한 후 레진 계면을 노출시켰다. 이 시편들을 조심스럽게 증류수로 세척, 건조하고 마운트하였고 금으로 코팅하였다.

Table 3. Mean shear bond strength (MPa) of each group and statistical analysis

Group	Mean SBS (S.D.)	No. of Specimens
UPB	36.06 (7.30)	20
UB	33.25 (9.03)	20
SPB	38.58 (9.26)	20
SB	36.89 (6.76)	20
UPBT	35.45 (8.44)	20
UBT	32.75 (9.21)	20
SPBT	36.53 (5.60)	20
SBT	36.17 (5.94)	20

FE-SEM을 이용하여 가속전압 10 kVp 으로 5,000 배 배율로 표면과 계면을 관찰하였다.

거칠기의 변화를 관찰하기 위하여 광학식 표면조도측정기를 이용하여 각 조건으로 만들어진 시편에서 가로 30 μm , 세로 40 μm 의 넓이에서 3군데씩 비접촉 거칠기를 측정하였다.

6) 통계분석

각 군의 평균 전단결합강도 값의 비교 및 유의성 검증을 위해 one-way ANOVA가 이용되었으며, 각 조건간의 비교에 t-test를 이용하였다. 사후검정은 Tukey HSD 검정을 이용하였다.

결 과

1. 전단결합강도

각 실험군의 전단결합강도의 평균과 표준편차는 Table 3에 정리하였다.

Figure 1에 평균전단결합강도와 표준편차를 그래프로 정리하였다. 정리된 결과에 따라 인산 전처리된 법랑질에 프라이머의 영향을 보기위해 t-test를 UPB-UB, SPB-SB, UPBT-UBT, SPBT-SBT간에 적용해 보았다. UniFil Bond와 Clearfil SE bond 모두에서 전단결합강도의 통계적인 유의차는 없었다($p>0.05$).

적용한 자가 부식 접착제의 종류에 따른 영향을 보기 위해 UPB-SPB, UB-SB, UPBT-SPBT, UBT-SBT 간에 t-test를 적용해 보았다. 모든 경우에서 UniFil Bond 보다 Clearfil SE bond가 더 높은 수치를 보였지만 통계적으로 유의한 차이는 없었다($p>0.05$).

Thermocycling의 영향을 보기위해 UPB-UPBT, UB-UBT, SPB-SPBT, SB-SBT 간에 t-test를 적용해 보았다. 각 실험 조건에서 thermocycling을 시행한 군이 결합력이 약간 낮은 수치를 보였지만 통계적으로 유의한 차이를 보이지는 않았다. ($p>0.05$)

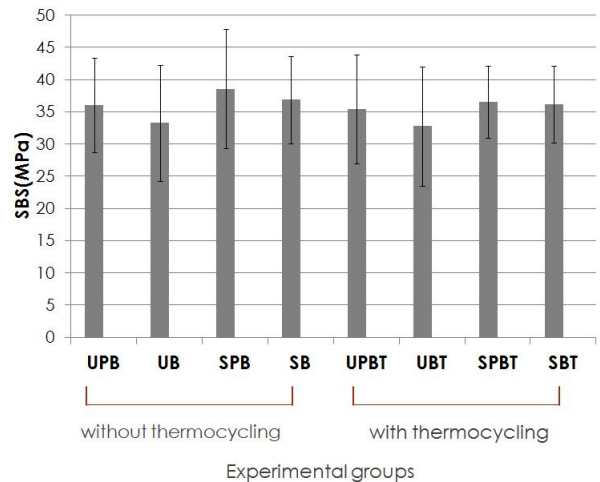


FIGURE 2. Comparison of shear bond strength of composites according to primer and thermocycling.

2. 주사전자 현미경 분석

주사전자 현미경 분석을 위해 만들어진 시편은 조건에 따라 제작한 후 법랑질을 산처리 하여 제거하고 침투된 레진부분을 관찰한 것이다. 인산 전처리 후 프라이머의 적용을 생략하고 본딩만 적용한 경우 더 불규칙하고 깊은 침투양상을 보이며 긴 레진 태그가 형성된 것도 관찰할 수 있다. 하지만 인산 전처리 후 프라이머를 적용한 경우 더 규칙적이지만 얇은 침투양상을 보이며 긴 레진 태그가 관찰되지 않는다.

광학식 표면조도측정기를 이용해 시편에서 세 군데씩 측정된 Ra값은 Table 4에 정리하였다. 주사전자 현미경 분석 결과와 같이 법랑질을 인산 전처리한 후 본딩만 도포한 것에 비하여 법랑질을 인산 전처리한 후 자가 부식 접착제의 프라이머를 도포한 쪽에서 거칠기가 감소하였다.

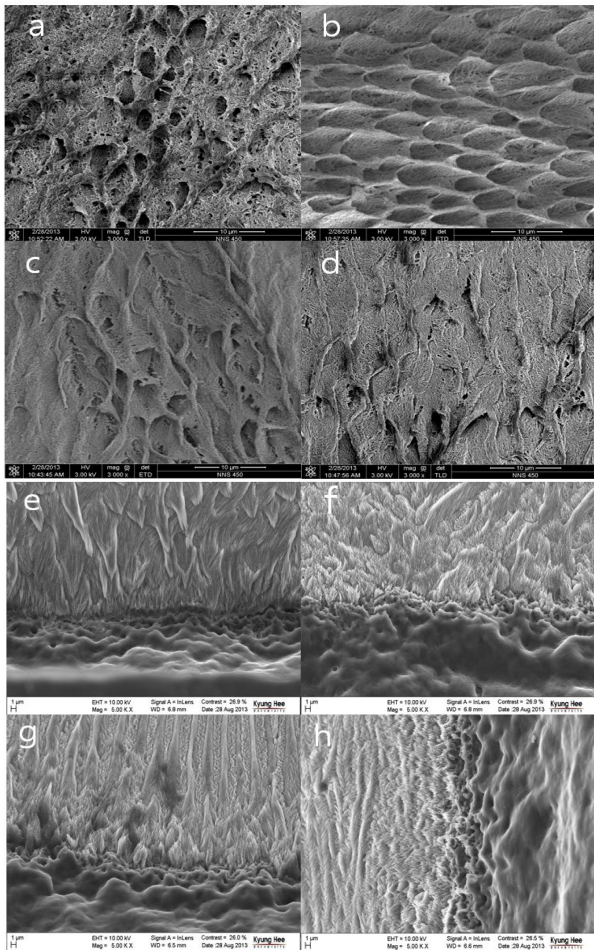


FIGURE 3. Representative SEM micrographs of resin tag penetration into enamel surface (enamel has been removed with acid) ($\times 5000$).

(a) SB (surface) (b) SPB (surface) (c) UB (surface) (d) UPB (surface) (e) SB (interface) (f) SPB (interface) (g) UB (interface) (h) UPB (interface)

고찰

Buonocore에 의해 산부식법¹⁾이 소개된 이래 치아에 복합레진을 접착하는 방법으로 산부식, 프라이머, 본딩을 단계적으로 적용하는 방법이 널리 이용되어 왔다. 이때 복합레진과 결합하는 기질로서의 법랑질과 상아질은 매우 다른 양상을 보인다. 법랑질에 접착시에는 산부식에 의해 약 10 μ m 정도의 법랑질 표면이 제거되고 5-50 μ m 정도 깊이의 다공성층이 형성된다(Gwinnett, 1971). 이렇게 형성된 미세구조에 낮은 점도의 레진이 흘러들어가고 광중합에 의한 결합이 형성된다. 상아질에 접착은 낮은 점도의 레진을 적용하기 전에 상아질 프라이머를 쓰게 된다. 상아질 프라이머의 성분인 HEMA, BPDPM, 4-META 등은 한쪽은 친수성, 그리고 다른 한쪽은 소수성인 두

개의 작용기를 가진다. 산부식에 의해 노출된 교원섬유망에 친수성인 프라이머가 침투하고 표면에너지를 증가시켜 젖음성을 향상시킨다(Swift, 1998). 이렇게 프라이머가 침투한 상아질에 낮은 점도의 레진을 도포하여 중합하면 혼성층이 형성된다(Nakabayashi 등, 1982).

자가 부식 접착제는 프라이머의 성분에 산성단량체를 이용한다(Van Meerbeek 등, 2011). 이 기능성 단량체 또한 한쪽은 친수성, 그리고 다른 한 쪽은 소수성인 두 개의 작용기를 가진다. 카르복시기나 인산기가 가지는 친수성 부분은 수소이온을 유리하여 법랑질과 상아질을 탈회시키고 도말층을 제거한다. 또한 이 부분이 치아의 칼슘과 화학적으로 결합한다. 소수성 부분은 산부식과 침투가 이루어진 후 낮은 점도의 레진과 광중합되게 된다.

이전의 연구들을 보면 자가 부식 접착제는 산부식능력이 약해 법랑질을 충분히 처리하지 못한다(Van Meerbeek 등, 2011; Abdalla 등, 2010). 따라서 법랑질을 인산으로 미리 산부식하여 더 강한 결합력을 얻을 수 있었다(Miguez 등, 2003; Rotta 등, 2007). 법랑질에서 자가 부식 접착제의 프라이머만 사용한 것 보다 인산에 의한 산 부식이 더 큰 거칠기를 얻을 수 있기 때문이라고 하였다. 이에 반해 최근의 몇몇 연구에서는 법랑질을 인산 전처리 하는 것이 자가 부식 접착제의 결합력을 증가시키지 않는다고 보고했다(Erickson 등, 2008; Carvalho와 Turbino, 2009; Rathke 등, 2013).

Miguez 등(2003)이 소의 법랑질을 이용하여 미세인장 결합강도를 측정한 결과 인산 전처리 후 Clearfil SE Bond의 프라이머를 적용한 군은 27.5 \pm 10.1 MPa의 미세인장결합강도를 보였고, 프라이머를 적용하지 않은 군은 28.8 \pm 15 MPa로 차이가 없다고 보고하였다. 반면에 Andreas 등(2013)이 사람의 법랑질을 이용하여 전단결합강도를 측정한 실험에서는 인산 전처리 후 Clearfil SE Bond의 프라이머를 적용한 군은 24.6 \pm 9.1 MPa의 전단결합강도를 보였고, 프라이머를 적용하지 않은 군은 38.5 \pm 8.7 MPa로 프라이머를 적용한 군의 결합강도가 현저히 낮았다.

본 실험에서는 인산으로 전처리한 법랑질에서 제조사의 지시대로 프라이머를 도포한 UPB는 36.06 \pm 7.3 MPa, SPB는 38.58 \pm 9.26MPa의 전단결합강도를 보였으며 프라이머의 적용을 생략한 UB는 33.25 \pm 9.03 MPa, SB는 36.89 \pm 6.76 MPa로 통계적으로 유의차를 보이지 않았다 ($p>0.05$).

인산 전처리된 법랑질에서 자가 부식 접착제의 프라이머의 적용이 결합력을 감소시킨다는 생각은 다음에 기인한다. 소수성의 법랑질 산부식양상에 프라이머가 친수성을 증가시킨다는 것이다. 자가 부식 접착제의 프라이

머는 산성의 높은 극성을 가지는 기능성단량체를 가지고 있고 수산화인회석결정에서 칼슘과 인을 용해시키기 위해 기능성 단량체를 이온화 할 수 있는 물을 포함하고 있다(Van Meerbeek 등, 2011). 프라이머 적용 후 건조 과정에서 수분이 제거되면 단량체/물의 비율이 증가하며 수분의 제거가 더 어려워진다. 또한 증가된 단량체는 친수성이 강해 일부 수분을 잡아두게 된다. 따라서 이후 적용된 소수성의 본딩제가 법랑질 표면에서 수분과 경쟁하게 된다(Hanning 등, 1999). 따라서 부적절한 레진의 침투와 중합이 이루어지게 된다.

또 다른 설명은 자가 부식 접착제는 수세를 하지 않기 때문에 산부식 동안 법랑질 표면에 인산칼슘이 침전되어 본딩제의 침투를 방해한다는 것이다. 산부식 후 건조를 하면 용액내의 칼슘과 인 이온의 농도가 높아지고 많은 인산칼슘이 침전된다(Rotta 등, 2007). 법랑질 표면에 증가된 불용성 염은 고분자량의 단량체를 끈적한 피막으로 만들고 이것이 본딩제의 침투를 방해한다는 것이다(Torres 등, 2009).

Erickson 등(2008)은 1단계 자가 부식 접착제인 Prompt-L-Pop을 이용한 실험에서 법랑질을 인산 전처리 후 PLP를 적용하였을 때 낮은 pH를 가지는 프라이머가 인산 산부식에 의해 형성된 법랑질구조를 제거한다고 하였다. 법랑질을 인산으로 전처리 하였을 때 낮은 pH를 가지는 자가 부식 접착제는 결합력의 증가가 적고 높은 pH를 가지는 자가 부식 접착제는 결합력의 증가가 많은 것은 산성단량체가 다양한 정도로 인산에 의해 형성된 다공성을 제거하여 레진의 침투 정도가 달라지기 때문이라고 설명하였다.

위와 같은 설명들은 인산 전처리된 법랑질에 레진의 침투의 변화를 설명하는 데에는 맞는 것으로 보인다. 본 실험에서 주사전자현미경 사진을 보면 인산전처리 후 프라이머의 적용을 생략하고 본딩만 적용한 경우 더 불규칙하고 깊은 침투양상을 보이며 긴 레진 테그가 형성된 것도 관찰할 수 있다. 하지만 인산 전처리 후 프라이머를 적용한 경우 더 규칙적이지만 얇은 침투양상을 보이며 긴 레진 테그가 관찰되지 않는다.

레진이 침투된 거칠기를 측정한 Ra(Average Roughness) 값도 위와 같은 사실을 뒷받침한다. Clearfil SE Bond는 인산 전처리 후 프라이머의 적용을 생략하고 본딩만 적용했을 때에 비해 인산 전처리 후 프라이머를 적용한 경우 37-59%의 Ra값의 감소를 보였다. UniFil Bond는 인산전처리 후 프라이머의 적용을 생략하고 본딩만 적용했을 때에 비해 인산전처리 후 프라이머를 적용한 경우 17-44%의 Ra값의 감소를 보였다.

본 실험에서는 자가 부식 접착제의 프라이머를 도포한 경우 법랑질 표면에 인산에 의해 형성된 미세구조에 레진의 침투 깊이가 감소했음에도 불구하고 프라이머의 도포를 생략하고 더 큰 거칠기를 가지는 경우와 유사한 전단결합강도를 보이고 있다. 이것은 법랑질과 복합레진과의 결합에 기계적인 결합 외에 다른 부분이 작용했음을 생각해 볼 수 있다. 그렇지 않으면 법랑질을 자가 부식 접착제만으로 산부식하여 생기는 아주 작은 기계적인 거칠기만으로(Hanning 등, 1999) 임상적으로 만족할 만한 결합력을 보이는 것을 설명할 수 없는 것이다 (Akimoto 등, 2007).

그 한 가지 가능성은 법랑질의 수산화인회석 결정과 자가 부식 접착제의 산성의 기능성 단량체 사이에 생기는 화학적 결합력이다(Yoshioka 등, 2002). 대부분의 자가 부식 접착제 시스템은 특별한 기능성 단량체를 가진다. 본 실험에 사용된 Clearfil SE Bond는 인산계열로 10-methacryloyloxydecyl dihydrogen phosphate(10-MDP)를 가지고 있고 UniFil Bond는 카르복시기 계열로 4-methacryloxyethyltrimellitic anhydride(4-META)를 가지고 있다. 기능성 단량체들은 치아의 칼슘과 화학적인 결합을 형성한다. 상아질에서는 탈회 이후 칼슘 성분이 줄어들고 단백질과 수분 등 다른 성분들의 비율 또한 높지만 법랑질에서는 거의 대부분이 무기질 성분이다. 특히 법랑질을 인산으로 산부식한 이후에도 여전히 기능성단량체는 무기질과 접촉하게 되며 인산 산부식으로 인해 더 넓은 접촉면에서 화학결합을 형성할 수 있기 때문에 화학적 결합력의 의미가 더 클 수 있을 것으로 생각된다.

Thermocycling은 구강내의 뜨겁거나 차가운 한계를 재현한 것으로 치아와 수복물 사이의 열팽창계수의 관계를 보여준다. Thermocycling은 접착시스템을 매개로 한 치아와 복합레진간의 결합에 스트레스를 주어 결합력에 영향을 준다(Davidson 등, 1993).

본 실험에서는 5000회의 thermocycling 이후 UB-UBT, UPB-UPBT, SB-SBT, SPB-SPBT간에 전단결합강도에 통계적 유의차이가 없었다. Thermocycling 이후 UB는 1.5%, UPB는 1.7%, SB는 1.9%, SPB는 5.3%의 감소만을 보였다. Thermocycling에 의한 결과는 제작한 시편의 C-Factor 등 다양한 실험 조건에 따라 차이가 있을 수 있음(Araby와 Talic, 2007)을 감안하여 생각하여야 하지만 UB, SB는 증가된 미세 거칠기에 의한 기계적 결합력에 의해, UPB, SPB는 일부 증가된 기계적 결합력과 화학적 결합력에 의해 안정적인 결합이 유지되고 있다고 생각된다. Ca-polycarboxylic acid는 수분하에서 결합의 계면에 폴리카보네이트 염을 형성하며 칼슘과 카르복시기 사이에

결합이 재생되어 스트레스를 완충하는 기능을 할 수 있다고 보고(Perdigao 등, 2004)된 바 있어 자가 부식 프라이머의 기능성 단량체의 화학적 결합에 의한 내구성 증가 가능성을 뒷받침한다.

치질과 복합레진 사이의 강력한 결합력은 변연을 봉쇄하고 중합응력을 견뎌내어 장기적인 수복의 성공을 가져오는 중요한 부분이다(Swift 등, 1995). 치간이개폐쇄술이나 법랑질과절 등 법랑질에 한정된 수복에서 자가 부식 접착제를 사용한다면 프라이머의 적용 유무에 상관 없이 인산 전처리는 유용한 술식으로 생각된다.

결 론

본 연구는 인산으로 전처리된 법랑질에 2단계 자가 부식 접착제를 사용하는 경우에 프라이머를 적용한 것과 적용하지 않은 것의 차이를 비교하기 위한 실험이다. 소의 법랑질을 이용하였고 2단계 자가 부식 접착제인 Clearfil SE Bond와 UniFil Bond를 이용하여 전단결합강도 시험 및 결합 계면에 대한 주사전자현미경 관찰과 비접촉거칠기 측정을 시행하였고 내구성 차이를 비교하기 위하여 열순환 실험을 시행하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

1. 인산으로 전처리된 법랑질에서 Clearfil SE Bond와 UniFil Bond 모두에서 프라이머를 적용한 군과 프라이머를 생략한 군의 전단결합강도는 통계적으로 유의성있는 차이가 없었다.. (p)0.05
2. 인산으로 전처리된 법랑질에서 Clearfil SE Bond와 UniFil Bond, 프라이머를 적용한 것과 생략한 것 모두에서 thermocycling에 의한 차이가 없었다. (p)0.05
3. 주사전자현미경 분석결과 법랑질을 인산으로 전처리 후 자가 부식 접착제의 프라이머를 적용하는 군은 레진의 침투 깊이가 작아졌고 낮은 Ra값을 보였다.

그러므로 인산으로 전처리된 법랑질에 2단계 자가 부식 접착제를 사용한다면 프라이머의 적용을 생략해도 좋을 것으로 생각된다.

참 고 문 헌

Abdalla AI, El Zohairy AA, Mohsen MA, Feilzer AJ (2010). Bond efficacy and interface morphology of self-etching adhesives to ground enamel. *J Adhes Dent* 12:19-25.

Akimoto N, Takamizu M, Momoi Y (2007). 10-year clinical evaluation of a self-etching adhesive system. *Oper Dent* 32:3-10.

Araby A, Talic Y (2007). The effect of thermocycling on the adhesion of self-etching adhesives on dental enamel and dentin. *J Contemp Dent Pract* 8:1-10.

Barkmeier WW, Erickson RL (1994). Shear bond strength of composite to enamel and dentin using Scotch-bond MultiPurpose. *Am J Dent* 7:175-179.

Buonocore MG (1955). A simple method of increasing the adhesion of acrylic filling materials to enamel surfaces. *J Dent Res* 34:849-853.

Carvalho AP, Turbino ML (2009). Can previous acid etching increase the bond strength of a self-etching primer adhesive to enamel. *Braz Oral Res* 23:169-174.

Davidson CL, Abdalla AI, De Gee AJ (1993). An investigation into the quality of dentin bonding systems for accomplishing a durable bond. *J Oral Rehabil* 20:291-300.

Erickson R, DeGee A, Feilzer A (2008). Effect of pre-etching enamel on fatigue of self-etch adhesive bonds. *Dent Mat* 24:117-123.

Gallo JR, Henderson M, Burgess JO (2000). Shear bond strength to moist and dry dentin of four dentin bonding systems. *Am J Dent* 13:267-270.

Gwinnett AJ (1971). Histologic changes in human enamel following treatment with acidic adhesive conditioning agents. *Arch Oral Biol* 16:731-738.

Hadavi F, Hey JH, Ambrose ER, Louie PW, Shinkewski DJ (1993). The effect of dentin primer on the shear bond strength between composite resin and enamel. *Oper Dent* 18:61-65.

Hanning M, Reinhardt KJ, Bott B (1999). Self-etching primer vs. phosphoric acid: an alternative concept for composite-to-enamel bonding. *Oper Dent* 24:172-180.

Hayakawa T, Horie K (1992). Effect of water-soluble photoinitiator on the adhesion between composite and tooth substrate. *Dent Mater* 8:351-353.

Ibarra G, Vargas MA, Armstrong SR, Cob DS (2002). Microtensile bond strength of self-etching adhesives to ground and unground enamel. *J Adhes Dent* 4:115-124.

- Itou K, Torii Y, Takimura T, Chikami K, Ishikawa K, Suzuki K (2001). Effect of priming time on tensile bond strength to bovine teeth morphologic structure of interface created by self-etching primers. *Int J Prosthodont* 14:225-230.
- Kanemura N, Sano H, Tagami J (1999). Tensile bond strength and SEM evaluation of ground and intact enamel surfaces. *J Dent* 27:523-530.
- McGuckin RS, Powers JM & Li L (1994). Bond strengths of dentinal bonding systems to enamel and dentin. *Quintessence Int* 25:791-796.
- Miguez P, Castro P, Nunes M, Walter R, Pereira P (2003). Effect of acid etching on the enamel bond of two self-etching systems. *Am J Dent* 5:107-112.
- Miyazaki M, Hinoura K, Honjo G, Onose H (2002). Effect of self-etching primer application method on enamel bond strength. *Am J Dent* 15:412-416.
- Moll K, Gartner T, Haller B (2002). Effect of moist bonding on composite/enamel bond strength. *Am J Dent* 15:85-90.
- Nakabayashi N, Kojima K, Masuhara E (1982). The promotion of adhesion by the infiltration of monomers into tooth substrates. *J Biomed Mater Res* 16:265-273.
- Pashley DH (1984). Smear layer: physiological considerations. *Oper Dent Suppl* 3:13-29.
- Perdigao J, Swift EJ, Lopes GC (2004). Effects of repeated use on bond strengths of one-bottle adhesives. *Quintessence Int* 35:367-370.
- Rathke A, Ostermeier V, Muche R, Haller B (2013). Reconsidering the double etching of enamel: Do self-etching primers contaminate phosphoric acid-etched enamel? *J Adhes Dent* 15:107-114.
- Rotta M, Bresciani P, Moura SK, Grande RH, Hilgert LA, Baratieri LN, Loguercio AD, Reis A (2007). Effect of phosphoric acid pretreatment and substitution of bonding resin on bonding effectiveness of self-etching system to enamel. *J Adhes Dent* 9: 537-546.
- Swift EJ, Perdigao J, Heymann HO (1995). Bonding to enamel and dentin: A brief history and state of the art. *Quintessence Int* 26:95-110.
- Swift EJ Jr (1998). Bonding systems for restorative materials-A comprehensive review. *Pediat Dent* 20: 80-84.
- Tay FR, Carvalho R, Sano H, Pashley DH (2000). Effect of smear layers on the bonding of a self-etching primer to dentin. *J Adhes Dent* 2:99-116.
- Thomas LM, Nicholls JI, Brudvik JS, Kydd WL (1994). The effect of dentin primer on the tensile bond strength to human enamel. *Int J Prosthodont* 7:403-409.
- Torres CR, Barcellos DC, Pucci CR, Lima Gde M, Rodrigues CM, Siviero M (2009). Influence of methods of application of self-etching adhesive systems on adhesive bond strength to enamel. *J Adhes Dent* 11:279-286.
- Van Meerbeek B, Yoshihara K, Yoshida Y, Mine A, De Munck J, Van Landuyt KL (2011). State of the art of self-etch adhesives. *Dent Mater* 27:17-28.
- Yoshioka M, Yoshida Y, Inoue S, Lambrechts P, Vanherle G, Nomura Y, Okazaki M, Shintani H, Van Meerbeek B (2002). Adhesion/decalcification mechanisms of acid interactions with human hard tissues. *J Biomed Mater Res* 59:56-62.