

산표면처리 후 노출된 상아질 교원섬유의 용해가 하이브리드층 형성에 미치는 영향

*전북대학교 치과대학 치과보존학교실

**서울대학교 치과대학 치과보존학교실

전성민* · 손호현** · 이광원*

Abstract

EFFECT OF COLLAGEN DISSOLUTION IN ACID CONDITIONED DENTIN ON RESIN-DENTIN HYBRID LAYER

Seong-Min Jeon*, Ho-Hyun Son**, Kwang-Won Lee*
*Department of Conservative Dentistry, College of Dentistry,
Chonbuk National University*, Seoul National University***

The effect of collagen dissolution in acid conditioned dentin was morphologically examined by both scanning and transmission electron microscopy. 18 freshly extracted human molars and dentin bonding systems of All Bond 2, Scotchbond Multipurpose, Superbond D-Liner were used in this study. For SEM preparation, each 3 of 9 exposed dentin surfaces were acid conditioned by using various acids within the above three bonding systems respectively. After acid conditioning of the other 3 exposed dentin surfaces as above, they were treated with 1.7% NaOCl for 2 minutes. The remaining 3 dentin surfaces were acid conditioned and treated with 3.3% NaOCl for 2 minutes. All of the specimens were then fixed in 4% glutaraldehyde for 12 h at 4°C and dehydrated in ethanols grades from 50% to 100%, then surface changes of the specimens were observed by using SEM. For TEM preparation, exposed dentin surfaces were acid conditioned with the same acid as SEM specimens and treated with 1.7%, 3.3% NaOCl respectively, then applied with corresponding bonding agents. After the procedures were finished, composite resin were applied on the dentin surfaces and light cured. Small, rectangular sticks with end dimensions of approximately 1 by 1 mm were sectioned and further sample preparative techniques for transmission electron microscopy were performed in accordance with the procedures used for ultrastructural TEM observations of calcified tissues.

The results were as follows :

1. In the 1.7% NaOCl retreated specimens after acid conditioning, the porous dentin surface of intertubular dentin and wide opening of dentinal tubules were appeared. And there were fine irregularities on the intertubular dentin, indicating a clear difference as compared with the acid conditioned specimens.
2. In the 3.3% NaOCl retreated specimens after acid conditioning, the intertubular dentin was further eroded causing a more porous and wider opening of dentinal tubules. Moreover, sharp irregularities on the intertubular dentin were more evident than those of acid conditioned and 1.7% NaOCl retreated specimens.
3. In all of the acid conditioned specimens, the resin-dentin hybrid layer of approximately 3.5mm thickness was formed and the collapsed collagen layer was observed on the uppermost part of hybrid layer in the specimens applied with All Bond 2. The collagen fibrils of intertubular dentin in specimens applied with Scotchbond Multipurpose were running perpendicular to the interface, and electron dense black layer demarcated from the deep unaltered dentin was more evident in the specimen applied with Superbond D-Liner than any other specimens.
4. In the 1.7% NaOCl retreated specimens after acid conditioning, the resin-dentin hybrid layer of approximately 2.5-3.0mm thickness was formed and the collapsed collagen layer and longitudinally running collagen fibrils as shown in the acid conditioned specimens were observed in the specimens applied with All Bond 2 and Superbond D-Liner.
5. In all of the 3.3% NaOCl retreated specimens after acid conditioning, the evidence of resin-dentin hybrid layer was not identified ; nevertheless, the longitudinally running collagen fibrils remained slightly in the specimens applied with All Bond 2.

I. 서 론

산 표면처리 후 탈회된 상아질 표면의 노출된 교원섬유에 대한 레진의 미세 기계적 결합이 도말층을 제거하는 상아질 접착제들의 일차적인 결합양식으로 인식되고 있다^{1,2,3}). 산 표면처리된 상아질에 레진 단량체의 침투에 의해 형성된 전이대 (transition zone)는 변성되지 않은 심부의 상아질과 수복레진간에 하이브리드 결합을 이루고, 형성된 하이브리드 결합은 상아질의 투과도와 레진 단량체의 확산도 등에 의해 영향을 받는다⁴).

도말층의 제거를 위해 적용된 산이나 칼슘치환제 (chelator)는 상아질 표면을 어느 정도 탈회시키고 관간 상아질의 탈회로 인해 노출된 상아질 교원섬유는 정상적으로 상아질내의 무기질에 의해서 유지되기 때문에 외력에 저항할

힘을 지니지 못해 붕괴되고 서로 다가붙어 세관 개구부를 좁히고 하이브리드층의 형성을 어렵게 한다⁵). 상아질 접착강화제의 영향에 대한 연구에서, Sugizaki⁶)는 효과적인 친수성 단량체 도포시 교원섬유내의 미세공간을 확장시키고 접착레진의 침투를 용이하게 해서 교원섬유층이 거의 정상 상아질과 유사한 형태로 회복됨을 관찰하였으며, 이는 친수성 단량체를 함유한 접착강화제의 도포로 변성된 교원섬유의 배열과 탄성 및 습윤도를 변화시켜 접착레진이 잘 침투되어 만들어진 결과로 생각된다.

상아세관내의 레진 tag 침투는 전체적인 상아질 결합력에 단지 일부만을 기여하는데, 산 표면처리한 상아질에 소수성 접착레진을 도포시 아주 적은 결합력의 향상을 보이고^{7,8}) 관간 상아질이 적은 비율의 곳이나 심부 상아질에서는 결합강도가 떨어지기 때문에 관간 상아질이

결국 상아질 결합의 안정성에 중요한 요소로 간주되며^{9,10}), 상아질의 습윤성 또한 상아질과 접착레진 간의 긴밀한 결합에 영향을 준다¹¹). 또한 레진 침투가 탈회된 상아질의 어느 깊이까지 형성되는가가 중요한 관심사이며, 이는 산처리에 의해서 칼슘구조가 제거되어 탈회층의 강도를 약화시키므로 레진 혼합물이 어느 정도까지 칼슘을 대체할 수 있는가가 상아질과의 결합력에 중요한 요소이기 때문이다¹²). Nakabayashi¹³)는 과도한 산처리에 의해 노출된 상아질 교원섬유에 접착레진이 완전하게 침투되지 못한 비침투층의 존재시 레진-상아질 결합을 약화시켜 구강내의 냉온 변화에 취약하고 짧은 시간내에 탈락된다고 주장하였으며, 레진에 의해서 완전히 침투되지 못한 교원섬유층은 접착레진에 비해 argon ion-beam etching에 저항성이 낮아 쉽게 붕괴된다고 보고하였다. 그러나, Fukushima 등¹²)은 6 mol/L 농도의 HCl 용액으로 탈회 후 레진-상아질 계면의 주사전자현미경 관찰에서, 탈회에 저항성을 갖는 하이브리드층을 관찰하였고, Watson¹³)도 색소가 부착된 접착레진이 상아질 표층에 침투됨을 보고하였다. 또한, Suzuki 등¹⁴)은 레진 상아질 계면의 Micro-Raman 분석에서 레진 단량체가 탈회된 상아질면으로 6mm 정도까지 침투되었음을 관찰하였다. Wang¹⁵)은 상아질을 65% 인산으로 탈회시킨 후 중합레진과 탈회 상아질 사이에서 하이브리드층 대신에 넓은 간격을 관찰하고 과도한 산 표면처리에 의한 콜라겐 변성의 가능성이 실패의 원인이 될 수 있음을 보고하였다.

이처럼 산 표면처리후 탈회된 교원섬유들을 안정화시키는 것이 하이브리드층을 형성하는데 매우 중요한 요소이며, 대부분의 상아질 접착제들은 노출된 교원섬유층과 반응성이 높은 친수성 단량체간의 반응에 의해 결합을 증진시키려는 시도를 하고 있다. 상아질과 접착레진간의 결합양상을 접합면 관찰을 통해 규명해 보고자 하는 노력이 계속되고 있으며, 최근에는 *in vivo*^{16,17,18})와 *in vitro*^{1,5})시에 하이브리드 결합의 형태학적 특징들을 제시하고 있다. 그러나, Kiyomura¹⁹)의 연구에 의하면 4-META/

MMA-TBB 레진을 물속에 장기간 침수시, 상아질내의 레진 강화층에서 탈락이 주로 일어남을 관찰하고, 레진 강화층의 매개에 의한 상아질과 접착레진간의 결합이 초기에 높은 강도를 지니지만, 장기간 동안 초기의 결합력을 유지하기 어렵다고 지적하였다. 또 Fujita 등²⁰)은 산 표면처리에 의해 노출된 교원섬유층이 레진 상아질간 결합의 내구성에 부정적인 영향을 보인다고 지적하고 10% NaOCl 용액을 30초 이상 적용시 노출된 교원섬유가 효과적으로 제거됨을 보고하였다. Wakabayashi²¹)는 산 표면처리된 상아질에 10% NaOCl을 적용해 노출된 교원섬유를 제거하여 건전 상아질내의 수산화인회석 결정을 노출시키고 레진강화층이 형성되지 않게 함으로써 결합력의 향상을 보고하였다. Suzuki 등²²)도 상아질 표면의 산처리후 관간 상아질과 세관주위의 교원섬유들이 유지력을 지니지 못해 서로 다가붙어 응집되어 버리기 때문에 접착레진의 침투가 어렵다고 지적하고, 인산과 NaOCl 용액을 같이 사용할 경우 높은 초기 결합력을 얻을 수 있다고 보고하였다.

이처럼 결합력의 향상을 위한 많은 노력에도 불구하고 상아질의 구조적, 생물학적 특성^{23,24})으로 인해 아직 상아질과 레진 사이에 강력하고 안정적인 결합을 이루기 어렵고, 근래에는 레진-상아질간 결합력 향상에 하이브리드층 형성이 미치는 영향에 대한 부정적인 연구들이 보고되고 있다. 이에 본 연구는 산 표면처리 후 상아질 표면에 1.7%와 3.3% 농도의 NaOCl 용액을 적용시켜 상아질 교원섬유의 용해가 하이브리드층 형성에 미치는 영향을 알아보기 위해 주사전자현미경과 투과전자현미경을 이용하였으며, 다양한 산 표면처리에 따른 상아질 표면변화와 상아질 표면처리에 따른 레진-상아질간 계면 및 하이브리드층내의 변화를 관찰하여 다소의 지견을 얻었기에 이를 보고하고자 한다.

II. 실험재료 및 방법

1. 실험재료

우식증과 교모가 심하지 않고 발거한 지 일주일 이상 경과되지 않은 18개의 대구치를 선택하여 치아표면에 부착된 유기잔사와 치석을 제거한 뒤 9개는 주사전자현미경 관찰을 위해 그리고 나머지 9개는 투과전자현미경 관찰을 위해 사용하였다. 상아질 접착제는 산 표면처리제로 인산 용액을 함유하는 All Bond 2 (Bisco, USA)와 10% 말레인산을 함유하는 Scotchbond Multipurpose (3M Dent, Prod. USA), 그리고 10% 구연산과 3% 염화철을 함유한 Superbond D-Liner (Sun Medical, Japan) 3종을 이용하였으며, 복합 수복레진으로는 Z-100 (shade : A 3.5 : 3M Dent, Prod. USA)을 사용하여 상아질 접착제가 도포된 표면에 2mm 두께로 충전하여 전자현미경 관찰을 위한 모체로 사용하였다(Table 1).

2. 실험방법

가. 주사전자현미경 관찰을 위한 시편 제작
발거된 18개의 대구치중 9개를 선택하여 상아질이 완전히 노출되도록 diamond saw (Isomet, Buehler Co. USA)를 사용하여 주수하에 일차 횡절단 하였으며 다시 3.0mm 두께의 상아질 시편을 만들기 위해서 일차 횡절단에 평행하게 재절단 하였고, 법랑질 잔사와 치수강 노출이 되지 않도록 주의하였다. 이후 노출된 상아질 표면을 600 grit 연마지에 30초간 연마하고 생리식염수에 넣어 37°C oven에 24시간

보관한 뒤 시편들을 무작위로 선택하여 다음과 같이 3 군으로 분류하였으며, 산 표면처리가 완료된 시편들을 4% glutaraldehyde에 12시간 고정 후 50%에서 100% 에탄올에 순차적으로 탈수하고 임계점 건조시켰으며 금 증착 후 가속전압 20kv로 주사전자현미경 하에서 관찰하였다.

1) 실험 1군 (산 표면처리군)

무작위로 선택된 3개의 치아의 상아질을 노출시킨 후 3종의 상아질 접착제내의 산 표면처리제를 사용하여 다음과 같이 적용하였다.

• All Bond 2 (AB 2) 산 표면처리군 :

노출된 상아질 표면에 10% 인산겔 (All-Etch)을 15초간 적용하였으며 20초간 수세한 뒤 공기를 분사하여 건조시켰다.

• Scotchbond Multipurpose (SBMP) 산 표면처리군 : 노출된 상아질 표면에 10% 말레인산을 15초간 적용하였으며 20초간 수세한 뒤 공기를 분사하여 건조시켰다.

• Superbond D-Liner 산 표면처리군 : 노출된 상아질 표면에 10-3 표면처리제를 10초간 적용하였으며 20초간 수세한 뒤 공기를 분사하여 건조시켰다.

2) 실험 2군 (산 표면처리후 1.7% NaOCl 재처리군)

상아질이 노출된 3개의 치아에 실험 1군과 동일한 방법으로 산 표면처리를 실행한 뒤 수세하고 1.7% NaOCl을 적신 소면구를 상아질 표면에 2분동안 문질러 재처리하였고, 20초간 수세한 뒤 건조시켰다.

3) 실험 3군 (산 표면처리후 3.3% NaOCl 재처리군)

상아질이 노출된 3개의 치아에 실험 2군과

Table 1. Dentin bonding systems used in this study

Material	Dentin Conditioner	Lot No.	Manufacturer
All Bond 2	10% phosphoric acid	070794	Bisco Inc.
SBMP	10% maleic acid	19940809	3M Dent. Prod.
Superbond D-Liner	10% nitric acid + 3% ferric chloride	40502	Sun Medical Co.

동일한 방법으로 실험하였으나 재처리제의 농도를 3.3% NaOCl로 증가시켜 적용하였다.

나. 투과전자현미경 관찰을 위한 시편 제작
발거된 18개의 치아중 9개를 선택하여 주사전자현미경 관찰을 위한 시편과 동일하게 상아질 절편을 제작하였으며 37°C oven에 24시간 위치시켜 치아가 충분히 수화될 수 있게 한 뒤 시편들을 무작위로 선택하여 다음과 같이 3 군으로 분류하였다.

1) 실험 1군 (산 표면처리군)

무작위로 선택된 3개의 치아의 상아질을 노출시킨 후 3종의 상아질 접착제를 사용하여 다음과 같이 적용하였다.

• All Bond 2 (AB 2) 도포군 :

노출된 상아질 표면에 10% 인산젤을 15초간 적용시킨 후 20초간 수세하였으며 표면을 건조시키지 않고 과량의 물만을 제거하지 위하여 얇은 흡습지를 가볍게 눌러 건조시보다 윤택한 표면이 나타나도록 하였다. Primer A 2방울과 B 2방울을 혼합한 뒤 상아질 표면에 5회 연속 도포하였으며 도포 사이에 건조는 시행하지 않았고 건조 후 상아질면이 윤택하지 않고 건조된 부위가 남아있는 경우 혼합된 접착강화제를 1-2회 재도포하였다. 이후 접착레진을 접착강화제가 도포된 상아질면에 균일한 층으로 적용한 뒤 20초간 광중합하였다.

• Scotchbond Multipurpose (SBMP) 도포군 :

노출된 상아질 표면에 10% 말레인산을 15초간 적용시킨 후 20초간 수세하였으며 공기를 분사하여 건조시켰다. 접착강화제를 도포하고 표면이 반짝일때까지 건조시킨 후 접착레진을 도포하고 10초간 광중합시켰다.

• Superbond D-Liner 도포군 :

노출된 상아질 표면에 10-3 표면처리제를 10초간 적용시킨 후 20초간 수세하였으며 공기를 분사하여 건조시켰다. 표면처리된 상아질면에 접착강화제를 도포하고 건조시킨 후 base 2 방울과 catalyst 1 방울을 균일하게 혼합하여 상아질 표면에 얇게 도포하고 건조시켰다.

2) 실험 2 군 (산 표면처리후 1.7% NaOCl

재처리군)

상아질이 노출된 3개의 치아에 실험 1군과 동일한 방법으로 산 표면처리를 시행한 뒤 수세하고 1.7% NaOCl을 적신 소면구를 상아질 표면에 2분동안 문질러 재처리하였고 접착강화제와 접착레진의 도포는 실험 1군과 동일하게 시행하였다.

3) 실험 3 군 (산 표면처리후 3.3% NaOCl 재처리군)

상아질이 노출된 3개의 치아에 실험 2군과 동일한 방법으로 실험하였으나 재처리제의 농도를 3.3% NaOCl로 증가시켜 적용하였다.

이후 Z-100 수복레진을 2mm 두께로 충전한 뒤 40초간 광중합하였으며 생리식염수에 넣어 37°C oven에서 24시간 동안 보관하였다. 투과전자현미경 관찰을 위해 Isomet low-speed diamond saw를 사용하여 레진이 부착된 상아질 시편의 중앙부를 관통하여 절단한 뒤 1mm 크기의 입방체로 형성하였다. 경조직의 투과전자현미경 관찰을 위해서 고안된 시편제작 방법에 따라 절단된 시편을 41.3g/L EDTA와 4.4 g/L NaOH를 함유한 EDTA용액에 4°C에서 12시간 보관하였다. 부분적으로 탈회된 시편들을 0.05M cacodylate 완충용액이 함유된 4% glutaraldehyde 용액 (pH 7.2)에 4°C에서 12시간 전고정한 후 0.1M cacodylate 완충용액으로 1시간동안 수세하고 1% OsO₄ (osmium tetroxide)로 후고정한 다음 5% uranyl acetate용액에서 12시간 동안 1차 염색하였다. 고정된 시편들을 에탄올 용액으로 25% 에서 100%까지 순차적으로 탈수하고 Epon 812에 포매하였다. 포매된 조직은 초박절편기 (Reichert-Jung, Ultracut E)를 이용하여 1mm 두께의 semi-thin 절편과 70-90nm 두께의 ultra-thin 절편으로 제작하였으며 semi-thin 절편은 toluidine blue로 염색한 뒤 광학현미경하에서 관찰하였고, ultrathin 절편은 5% uranyl acetate에서 20분간, lead citrate에서 3분간 염색한 후 투과전자현미경 (JEOL, JEM 1200 EX II, Japan)으로 관찰하였다.

III. 실험결과

1. 주사전자현미경 관찰

산 표면처리제의 종류와는 관계없이 표면처리한 실험군내 모든 시편에서 도말층이 제거되어 상아세관이 개방되고 비교적 매끄러운 관간 상아질 표면이 관찰되었다(figs. 1,4,7). 산 표면처리 후 1.7% NaOCl로 재처리한 실험군내 모든 시편에서 산 표면처리한 실험군에 비해 상아세관의 개방성과 상아질 표면의 다공성이 증가하였으며, 관간 상아질의 미세한 불규칙성 요철 또한 관찰되었다(figs. 2,5,8). 산 표면처리 후 3.3% NaOCl로 농도 증가시 산 표면처리 및 1.7% NaOCl로 재처리한 실험군에 비해 상아질 표면의 다공성이 증가하였으며 관간 상아질의 뚜렷한 불규칙성 요철 또한 더욱 명확하게 관찰되어짐으로써 콜라겐 섬유층의 용해가 충분하게 이루어졌음을 보여주었으나(figs. 3,6,9), 각 실험군에서 산 표면처리제에 따른 특징적인 차이점은 관찰되지 않았다.

2. 투과전자현미경 관찰

• 실험 1군 : 산 표면처리한 모든 실험군에서 심부 상아질 구조와 접착레진 사이에 약 3.5mm 두께의 두터운 하이브리드 층이 연속성을 지니며 잘 형성되었고 층의 상부에서 무기질 미세입자의 축적을 볼 수 없었으며, 층의 기저부에서 전자밀도가 높은 흑색 선구조에 의해서 심부의 변성되지 않은 상아질과 비교적 명확한 경계를 이루고 있었다(figs. 10,13,15). AB 2 도포군의 경우 형성된 하이브리드층의 상부에서 약 1mm 두께의 변성 또는 붕괴된 콜라겐층으로 보이는 구조가 관찰되었고(fig. 10) SBMP 도포군층의 상부에서 상아질면에 수직으로 주행하는 콜라겐 섬유층을 보이며(fig. 13), 특히 Superbond D-Liner 도포군의 경우 레진성분으로 볼 수 있는 검게 염색된 구조들이 절단된 콜라겐 섬유 사이로 층의 기저부까지 깊게 침투되어 다른 도포군에 비해 더 경계가 분명하고 전자밀도가 높은 흑색층이 관찰되었다(fig. 15).

• 실험 2군 : 산 표면처리 후 1.7% NaOCl로 재처리한 실험군에서 약 2.5-3.0mm 두께로 형

성된 하이브리드층이 형성되었으며 상아질과 레진간의 불연속성은 볼 수 없었고, 상아세관은 층으로 절단되고 접착레진이 하이브리드층 및 세관 벽에 긴밀히 접착하여 레진 tag가 형성되었으나 세관 개구부에서 레진 tag의 수축상 및 측지(lateral branch)는 관찰할 수 없었다(figs. 11,14,16). AB 2 도포군층의 상부에서 상아질면에 수직으로 주행하는 콜라겐 섬유층이 보이고(fig. 11) SBMP 도포군에서 약 0.5mm 두께의 변성 또는 붕괴된 콜라겐층으로 보이는 구조가 관찰되었으며(fig.14), Superbond D-Liner 도포군의 세관 개구부에서 전자밀도가 높은 무기질의 미세 입자들이 축적되어 관찰되었다(fig. 16).

• 실험 3군 : 산 표면처리 후 3.3% NaOCl로 재처리한 실험군에서 하이브리드층의 형성은 거의 볼 수 없었으며(figs. 12,17), Superbond D-Liner 도포군에서 접착레진이 하이브리드층의 개재없이 노출된 상아질 표면에 긴밀히 접착되어 명확한 접착면을 관찰할 수 있었으나(fig. 17), AB 2 도포군의 경우 상아질 표층의 상부에서 수직으로 주행하는 치밀하지 못한 콜라겐층이 남아있어 상아질과 레진 사이의 경계를 명확히 식별할 수 없었다(fig. 12).

IV. 총괄 및 고안

탈회된 교원섬유층 내의 붕괴를 막고 입체적 구조를 변형시키지 않게 하기 위한 방법들로 습윤결합 이외에도 HEMA의 높은 적심도 및 침투도를 이용하거나 첨가되는 레진 단량체들의 투과도를 동시에 증진시켜 교원섬유를 안정화시키고 결합력을 향상시킬 수 있다^{25,26}. Nakabayashi 등²⁷은 레진-상아질간 하이브리드층 형성을 위해서는 다음과 같은 3가지 특성이 요구된다고 하였다. 첫째, 교원섬유를 포함한 상아질내 펩타이드가 상아질 탈회시 변성되지 않아야 하고, 둘째, 접착레진에 친수성과 소수성기를 모두 가진 단량체가 포함되어져야 하며, 셋째, 산소와 수분의 존재하에서도 중합될 수 있어야 한다는 것이다. 산 표면처리 후 상아세관액에 의한 상아질 투과도 증가가

상아질 결합에 부정적인 역할을 한다는 가정에 대해 Kanca²⁸⁾와 Gwinnett²⁹⁾은 산 표면처리후 자체 유지력을 지니지 못한 상아질 교원섬유의 붕괴와 변형을 막기 위해 상아질 표면의 습윤을 강조하였으며, 이 등³⁰⁾도 산 표면처리후 습윤 시편 실험군들에서의 높은 결합력을 관찰하고 짧은 시간의 건조과정에 의해 표층 콜라겐 구조들의 변성이 쉽게 일어날 수 있음을 보고하였다. Wang 등¹⁴⁾은 레진-상아질간 결합력이 탈회된 상아질내로의 단량체 침투도에 의해서 변화된다고 하였으며, 강한 산성의 표면처리제에 의해 탈회되어 노출된 교원섬유들이 레진에 의해 침투되지 못하면 레진-상아질 결합의 약화를 초래한다는 주장에 대해 Ferrari 등³¹⁾은 SBMP의 10% 말레인산 대신에 40% 인산의 사용 후 접착강화제 도포시 레진이 탈회된 깊이까지 완전히 침투되어 레진-상아질 확산접합층의 두께가 증가됨을 관찰하고, 접착강화제가 친수성이고 확산에 필요한 조건들을 갖춘 경우 탈회된 교원섬유층을 잘 통과할 수 있음을 제시하였다. 또한 Sugizaki⁶⁾는 HEMA나 NMSA 같은 효과적인 친수성 단량체 도포시 교원섬유내의 미세공간을 확장시키고 접착레진의 침투를 용이하게 해서 교원섬유층을 거의 원래 수준으로 회복시켜 정상 상아질과 유사한 형태의 교원섬유층을 관찰할 수 있다고 보고하였다.

이처럼 산 표면처리 후 탈회된 상아질 교원섬유들을 안정화시키는 것이 하이브리드층을 형성하는데 매우 중요한 요소이며, 레진의 미세기계적 결합이 상아질 접착제들의 일차적인 결합양식으로 인식되고 있다. 손³²⁾의 연구에 의하면, 5% NaOCl 용액을 이용한 상아질 교원섬유의 제거가 표층에 제한되어 일어났으며, 10% NaOCl 용액을 사용 후에도 미약하나마 하이브리드층이 형성됨을 보여주어 상아질 표층에 교원섬유뿐아니라 탈회에 의해서 제거되지 않고 남아있는 수산화인회석 결정들이 하이브리드층 형성에 관여함을 간접적으로 확인하여 주었다. 또한, 이 등³³⁾도 형성된 하이브리드층 내에 칼슘을 함유한 무기질들이 존재하고 이들이 레진 단량체에 의해 감싸여져 강한 레진-

상아질간 결합을 이루는데 중요한 일부분임을 강조하고 있다. 그러나, Wakabayashi 등³⁰⁾은 인산을 이용한 상아질의 산 표면처리를 통해 교원섬유를 노출시키고, 다시 노출된 교원섬유를 10% NaOCl 용액으로 용해시키면 접착레진이 상아질 표면에 노출된 수산화인회석 결정에 직접 도포될 수 있어 강한 초기 결합을 이룰 수 있으며, NaOCl 용액 처리시간의 연장에 따라 결합강도가 더욱 증가되어 하이브리드층 형성이 결합력에 중요하게 관여하지 못함을 보고하였다. 본 실험에서도 산 표면처리한 시편의 하이브리드층 두께가 약 3.5mm 정도로 1.7% NaOCl로 재처리한 시편에 비해 두텁게 형성되었고 3.3% NaOCl로 재처리한 시편에서는 하이브리드층이 거의 형성되지 못함으로써 3.3% 이상의 NaOCl 농도에서 상아질 교원섬유가 효과적으로 제거될 수 있다고 사료된다. 또한 SEM 관찰에서, 산 표면처리 후 NaOCl로 재처리시 상아세관의 개방성과 상아질 표면의 다공성 및 관간 상아질의 요철 또한 증가하여 NaOCl 농도 증가에 따라 보다 긴밀한 결합을 이룰 수 있음을 유추할 수 있다.

근래의 대부분의 상아질 접착제는 상아질과 법랑질을 동시에 산 부식하는 것이 보편화 되어 있으며 그 농도와 적용시간은 과도히 상아질을 탈회시키지 않으면서 법랑질을 충분히 부식시킬 수 있도록 특별히 고안되어 임상시술 과정을 간단히 하고 기술적 의존도를 줄일 수 있다. 레진 강화층 형성에 관주 상아질과 관간 상아질의 포함 여부에 따라 2 가지 형태의 탈회가 가능하다⁵⁾. Mode I은 관주 상아질 탈회가 세관 개구부에 제한되어 원래의 직경보다 약간 넓게 탈회되는 형태이고, Mode II는 관주 상아질과 관간 상아질이 함께 탈회되어 노출된 관간 상아질의 교원섬유층이 개구부쪽으로 압축되어 역삼각형 모양의 레진 tag가 형성되는 형태이다. 본 실험에서는 비록 NaOCl 농도 증가에 따라 상아세관의 개방성과 상아질 표면의 다공성이 증가되었지만 관주 상아질의 탈회가 세관 개구부에 제한된 Mode I의 탈회형태를 볼 수 있었으며, 투과전자현미경 관찰에서도 세관 입구에서 깔대기 모양의 레진 tag를 관찰할

수 없었다.

레진-상아질 계면의 미세구조의 연구에 주사 전자현미경과 투과전자현미경이 유용하게 이용되고 있으며, 강산으로 치질을 용해시켜 얻은 resin replica를 관찰하는 방법³⁰⁾ 및 argon ion beam etching 후 주사전자현미경 관찰방법³¹⁾뿐 아니라 근래에는 수복물이나 치질에 손상이 없는 건전한 시편을 관찰할 수 있는 공초점 레이저 주사전자현미경을 이용한 방법³²⁾들이 도입되고 있다. Van Meerbeek 등^{5, 34)}은 SEM과 TEM 분석을 이용하여 수복레진과 심부상아질 사이의 확산접합층의 미세구조를 특징적인 3층으로 나누어 분류하였다. 가장 상층에서 레진에 의해서 완전히 침투되어 구조적 특성이 없는 붕괴 또는 변성된 콜라겐층이 넓게 흑색층을 이루고 그 하부로는 tunnel-like 미세공간에 의해서 레진 침투가 제한되고 탈회되어 부분적으로 변성된 콜라겐 밀집층이 수복레진의 증합 수축을 보상하기 위한 완충작용을 하며, 가장 하부층에는 산 처리시 불완전하게 용해되고 레진에 의해서 감싸여진 수산화인회석을 함유한 부분적인 상아질 탈회층을 보고하였다. 또한 확산접합층의 경계부에 미세입자의 침착과 상아세관의 부분적인 폐쇄를 관찰하고 이 확산접합층을 silica 입자가 침투되는 것을 막는 여과지 같은 역할을 하는 것으로 설명하였으며, 이와 유사한 미세입자가 접합확산층 위에 침착된 것을 Ikami 등³⁵⁾도 TEM을 통해 관찰하였다. 그러나, 본 실험에서는 부분적인 상아질 탈회층을 명확히 식별할 수 없었으며, 다만 심부의 변성되지 않은 상아질과의 경계부에서 전자밀도가 높은 흑색의 선구조들을 관찰할 수 있었으나 확산접합층 상부의 미세입자의 축적은 볼 수 없었고, 일부 시편의 세관 개구부에서 전자밀도가 높은 무기질 미세입자들의 축적이 관찰되었다.

탈회 상아질에 실제 레진 침투가 어느정도 일어나는지 명확히 알기 어렵다. 그럼에도 불구하고 구조적 특성을 파악할 수 없는 상층의 넓은 흑색층의 존재는 산 표면처리시 이 깊이 만큼 교원섬유가 변성되었음을 알 수 있고 또한 산 표면처리시 상아질 표층의 도말층이 제거

되고 변성된 콜라겐들이 붕괴되어 형성되었다고 가정할 수 있다³⁶⁾. 상아질층 내의 이 변성된 교원섬유층으로 레진이 침투되어 레진강화층의 기저부를 형성한다. 그러나 그 하부에서 관찰되는 콜라겐 밀집층에서 미세공간을 가진 교원섬유가 상아질 표층에 평행하게 주행하여 레진침투가 횡방향으로 주행되는 콜라겐 섬유들에 의해 제한받을 수 있다³²⁾. 결국 레진 침투는 주로 상부의 변성된 교원섬유층에서 일어나고 상아질 표층에 제한되어 그 하부층에 미치지 못하고 교원섬유내 공간의 무구조 입자의 존재는 tunnel-like 구조로의 제한된 레진 침투를 보여준다³⁷⁾. 본 연구에서는 많은 부위에서 콜라겐 섬유들이 표층에 수직으로 주행되는 모습을 보이고 있음으로써 레진 침투가 형성된 하이브리드층 내부로 깊게 일어날 수 있음을 암시하고 있고, 일부의 시편에서 레진 성분으로 볼 수 있는 검게 염색된 구조들이 절단된 섬유 사이로 층의 기저부까지 깊게 침투되어 관찰되었다. 그러나, 구조적 특성이 없는 상부의 붕괴 또는 변성된 콜라겐층을 가진 일부의 시편에서는 하이브리드층내의 미세구조 및 수직으로 주행하는 콜라겐 섬유층이 관찰되지 않아서 그 하부로 레진 침투가 제한될 수 있음을 보여주고 있다.

Van Meerbeek 등³²⁾은 레진 침투된, 밀집된 교원섬유층은 수복레진의 증합수축을 보상하기 위한 탄성을 가짐으로써 완충작용을 하는 것으로 설명하고 있다. 또한 산에 의한 전처리가 상아질의 경도를 변화시켜^{37, 38)} 수복레진의 증합수축동안 상아질에 유연성과 탄성을 제공한다. 실제로 Bream 등³⁹⁾은 레진이 침투된 교원섬유층의 young's 탄성계수가 접착레진 충전후와 비교해서 증가 되었음을 보고하였다. 그러나, 탈회된 콜라겐 밀집층과 변형되지 않은 심부의 상아질 사이에 존재하는 전자밀도가 높은 선구조는 설명하기 어렵다. 아마도 부분적으로 용해된 레진과 혼합된 수산화인회석이 교원섬유들에 침착되어 있는것 같다. 결국 TEM 시편 제작과정에서 EDTA에 의해 심부의 변성되지 않은 수산화인회석 결정의 용해도를 고려할 때 이 기저부에 남아있는 수산화인회석 결정은

EDTA 탈회에 저항성을 가지도록 변형되어야 하고 레진 성분으로 감싸여진 뒤 보호되어졌다고 생각된다. 동일한 흑색띠가 Nakabayashi 등⁴⁰⁾에 의해서 증화된 염산의 탈회후에 관찰되었고, Watanabe 등⁴¹⁾은 이러한 구조물들을 레진 침투의 최하방 부위로 생각하고 있으며 부분적으로 유리된 수산화인회석들이 레진성분으로 감싸여진 뒤 교원섬유에 침착되어 나타나는 모습이라고 설명하고 있다. 또한 이러한 조직은 산에 대한 높은 저항성을 지니고 쉽게 가수분해되지 않음으로써 더욱 내구성 있는 상아질 결합을 만들 수 있다고 주장하였다.

본 실험에서 산 표면처리 후 노출된 상아질 교원섬유의 용해가 하이브리드층 형성에 미치는 영향을 연구하였으며, 산 표면처리한 시편에서 두꺼운 하이브리드층이 형성되었음에 반해서 NaOCl 농도 증가시 하이브리드층의 형성이 미약하여 노출된 상아질 교원섬유의 용해가 하이브리드층 형성에 부정적인 영향을 보인다고 유추할 수 있고 노출된 콜라겐 섬유에 대한 레진의 미세 기계적 결합이 하이브리드층 형성에 중요한 요인으로 작용함을 보여주고 있다. 그러나, 아직 산 표면처리 후 노출된 상아질 교원섬유층으로 레진성분이 어느 정도 침투될 수 있을 지 명확하게 알 수 없으며, 형성된 하이브리드층의 두께와 레진-상아질간 결합력과의 관계 또한 연구를 해야 할 것으로 사료된다.

V. 결 론

산 표면처리 후 노출된 상아질 교원섬유의 용해가 하이브리드층 형성에 미치는 영향을 연구하기 위하여 발거한 지 일주일의 경과되지 않은 건전한 18개의 대구치에 All Bond 2 (AB 2), Scotchbond Multipurpose (SBMP), Superbond D-Liner의 상아질 접착제를 산 표면처리한 상아질과 산 표면처리 후 1.7%와 3.3% NaOCl로 2분간 재처리한 상아질에 각기 나누어 도포하였으며, 다양한 산 표면처리에 따른 상아질 표면변화와 상아질 표면처리에 따른 레진-상아질간 계면 및 하이브리드층내의 변화를

주사전자현미경과 투과전자현미경으로 관찰하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

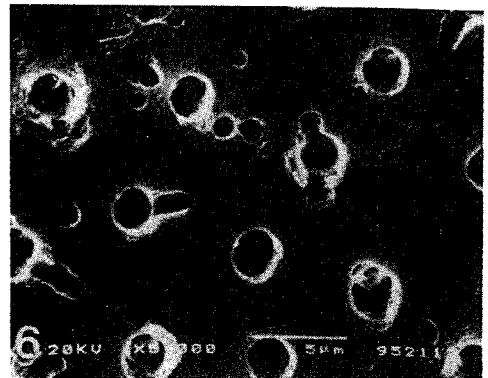
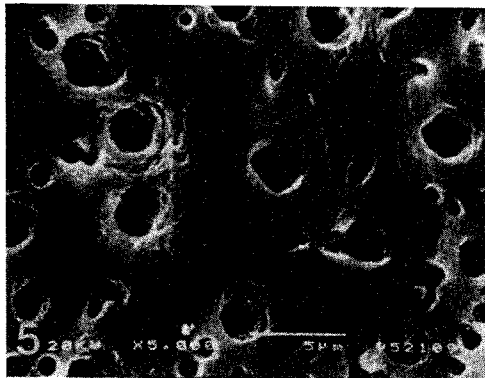
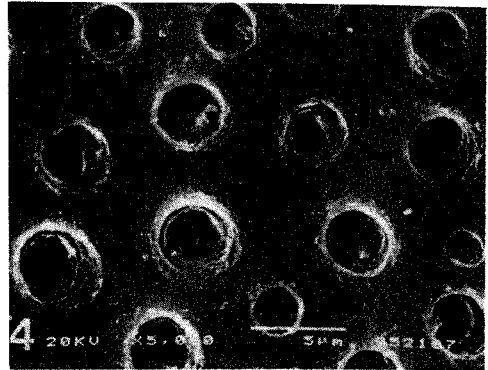
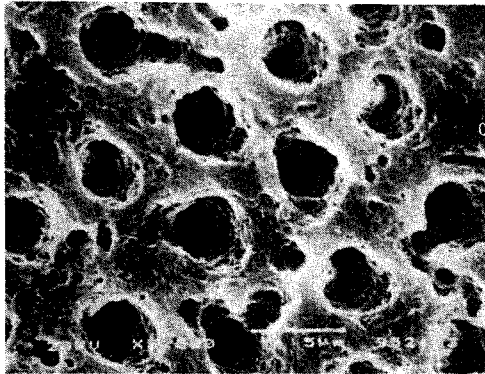
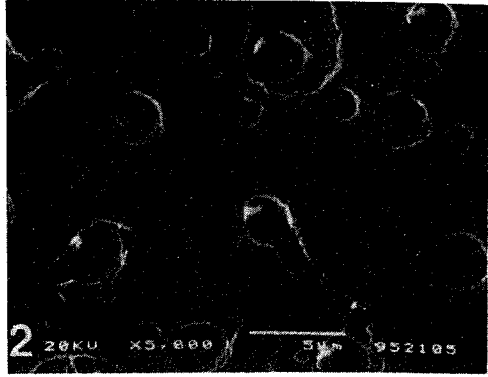
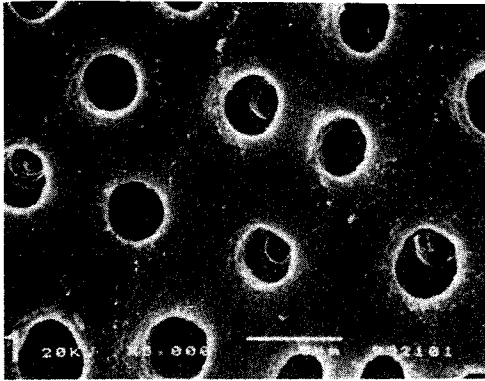
1. 산 표면처리 후 1.7% NaOCl로 재처리한 실험군에서 산 표면처리한 실험군에 비해 상아세관의 개방성과 상아질 표면의 다공성이 증가하였으며, 관간상아질의 미세한 불규칙성 요철 또한 관찰되었다.
2. 산 표면처리 후 3.3% NaOCl로 재처리한 실험군에서 산 표면처리 및 1.7% NaOCl로 재처리한 실험군에 비해 상아질 표면의 다공성이 증가하였으며, 관간상아질의 뚜렷한 불규칙성 요철 및 관주상아질의 탈회상이 더욱 명확히 관찰되었다.
3. 산 표면처리한 모든 실험군에서 약 3.5mm 두께의 두터운 하이브리드층이 형성되었으며, AB 2 도포군층의 상부에서 변성 또는 붕괴된 콜라겐층으로 보이는 구조가 관찰되었다. SBMP 도포군층의 상부에서 상아질면에 수직으로 주행하는 콜라겐 섬유층을 보이고, Superbond D-Liner 도포군에서 다른 도포군에 비해 더 경계가 분명하고 전자밀도가 높은 흑색층이 관찰되었다.
4. 산 표면처리 후 1.7% NaOCl로 재처리한 실험군에서 약 2.5-3.0mm 두께로 형성된 하이브리드층이 형성되었으며, AB 2 및 SBMP 도포군에서 산 표면처리한 실험군에서 볼 수 있는 변성된 콜라겐층과 상아질면에 수직으로 주행하는 콜라겐 섬유층이 관찰되었다.
5. 산 표면처리 후 3.3% NaOCl로 재처리한 실험군에서 하이브리드층의 형성은 거의 볼 수 없었으며, Superbond D-Liner 도포군에서 접착레진이 하이브리드층의 개재없이 노출된 상아질 표면에 긴밀히 접착되어 명확한 접착면을 관찰할 수 있었으나, AB 2 도포군의 경우 상아질표층의 상부에서 수직으로 주행하는 치밀하지 못한 콜라겐층이 남아있어 상아질과 레진 사이의 경계를 명확히 식별할 수 없었다.

- tment on adhesion of adhesive composite resin to dentin-dissolution of collagen. *Adhesive Dent* 8 : 227-235, 1990.
21. Yuki Wakabayashi. Effect of Dissolution of collagen on Adhesion to Dentin. *Int J Prosthodont* 7 : 302-306, 1994.
 22. Suzuki K, Takahashi M, Nakai H. Treatment of dentin by aqueous solution of amino-acid derivatives - HEMA. *Adhes Dent* 8 : 43-51, 1990.
 23. Stanley HR. Pulpal considerations of adhesive materials. *J Dent Res(Supple 5)* : 151-164, 1992.
 24. Cox CF. Effects of adhesive resins and various dental cements on the pulp. *J Dent Res (Supple 5)* : 165-176, 1992.
 25. Eick JD, Robinson SJ, Chappell RP, Cobb CM, Spencer P. The dentinal surface : its influence on dentinal adhesion. Part III. *Quint Int* 24 : 571-582, 1993.
 26. Eick JD, Robinson SJ, Byerley TJ, Chappelow CC. Adhesives and nonshrinking dental resins of the future. *Quint Int* 24 : 632-640, 1993.
 27. Nakabayashi N, et al. Hybrid layer as a dentin-bonding mechanism. *J Esthe Dent* 3(3) : 133-138, 1991.
 28. Kanca J. Effect of drying on bond strength. *J Dent Res* 70 : 394(Abstr 1029), 1991.
 29. Gwinnett AJ. Dentin bond strength after air drying and rewetting. *Am J Dent* 7 : 144-148, 1994.
 30. 이광원, 박수정, 손호현. 산 표면처리후 상아질과 법랑질 표면의 습윤이 결합강도에 미치는 영향. *대한치과보존학회지*. 20 : 328-341, 1995.
 31. Ferrari M. et al. Morphologic aspects of the resin-dentin interdiffusion zone with five different dentin adhesive systems tested in vivo. *J Prosthe Dent* 71 : 404-408, 1994.
 32. 손호현. 노출된 교원섬유의 용해가 레진-상아질간 결합에 미치는 영향. *대한치과보존학회지*. 20 : 856-868, 1995.
 33. 이광원, 이명중. 산 표면처리 후 상아질 표면의 습윤이 하이브리드층 형성에 관한 전자현미경적 연구. *대한치과보존학회지*. 20 : 463-486, 1995.
 34. Van Meerbeek B, Dhém A, Goret-Nicaise M, Braem M, Lambrechts P, Vanhe G. Comparative SEM and TEM examination of the ultrastructure of the resin-dentin interdiffusion zone. *J Dent Res* 72 : 495-501, 1993.
 35. Ikami K, Fukushima M, Yoshida K, Yamaga M, Usami Y, Iwaku M. Ultrastructural changes of the dentin by surface conditioners. *Adhes Dent* 10 : 141-142, 1992.
 36. Eick JD. Smear layer - materials surface. *Proc Finn Dent Soc* 88(Suppl 1) : 225-242, 1992.
 37. Inagaki A, Chigira H, Itoh K, Wakumoto S. Effect of self-etching primers on dentin. *Dent Mater* 5 : 404-407, 1989.
 38. Hasegawa T, Manabe A, Itoh K, Wakumoto S. Investigation of self-etching primers on dentin. *Dent Mater* 5 : 408-410, 1989.
 39. Braem M, Lambrechts P, Van Doren V, Vanherle G. The impact of composite structure on its elastic response. *J Dent Res* 65 : 648-653, 1986.
 40. Nakabayashi N, Ashizawa M, Nakamura M. Identification of a resin-dentin hybrid layer in vital human dentin created in vivo : durable bonding to vital dentin. *Quint Int* 23 : 135-141, 1992.
 41. Watanabe I, Nakabayashi N, Pashley DH. Bonding to ground dentin by a phenyl-p self-etching primer. *J Dent Res* 73(6) : 1212-1220, 1994.

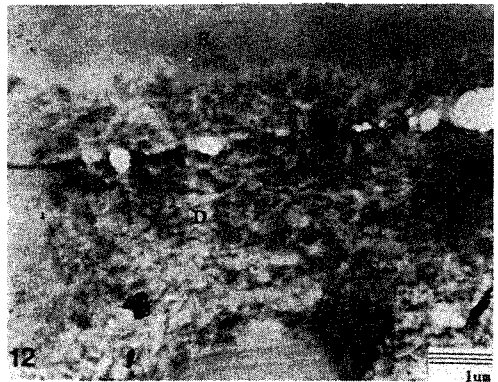
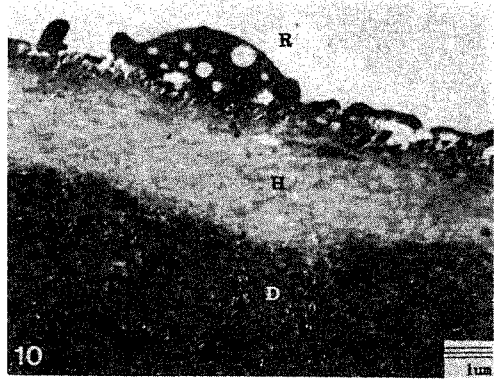
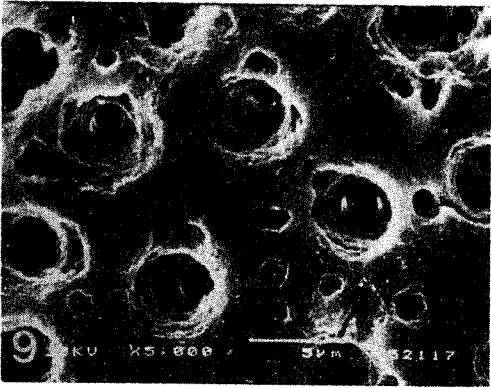
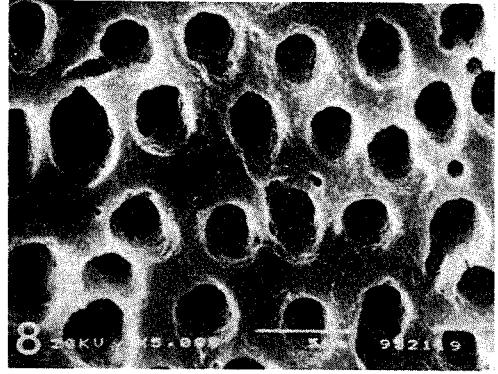
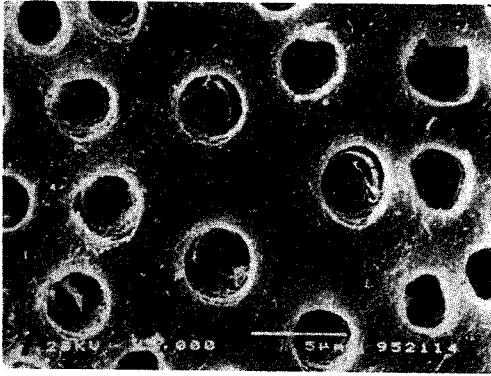
사진부도

- Fig. 1. A SEM photograph of the dentin surface in the acid conditioned specimen of All Bond 2. ($\times 5000$)
- Fig. 2. A SEM photograph of the dentin surface in the acid conditioned / 1.7% NaOCl retreated specimen of All Bond 2. ($\times 5000$)
- Fig. 3. A SEM photograph of the dentin surface in the acid conditioned / 3.3% NaOCl retreated specimen of All Bond 2. ($\times 5000$)
- Fig. 4. A SEM photograph of the dentin surface in the acid conditioned specimen of Scotchbond Multipurpose. ($\times 5000$)
- Fig. 5. A SEM photograph of the dentin surface in the acid conditioned / 1.7% NaOCl retreated specimen of Scotchbond Multipurpose. ($\times 5000$)
- Fig. 6. A SEM photograph of the dentin surface in the acid conditioned / 3.3% NaOCl retreated specimen of Scotchbond Multipurpose. ($\times 5000$)
- Fig. 7. A SEM photograph of the dentin surface in the acid conditioned specimen of Superbond D-Liner. ($\times 5000$)
- Fig. 8. A SEM photograph of the dentin surface in the acid conditioned / 1.7% NaOCl retreated specimen of Superbond D-Liner. (SEM $\times 5000$)
- Fig. 9. A SEM photograph of the dentin surface in the acid conditioned / 3.3% NaOCl retreated specimen of Superbond D-Liner. (SEM $\times 5000$)
- Fig.10. A TEM photograph of the resin-dentin interface in the acid conditioned specimen applied with All Bond 2.
- Fig.11. A TEM photograph of the resin-dentin interface in the acid conditioned/1.7% NaOCl retreated specimen applied with All Bond 2.
- Fig.12. A TEM photograph of the resin-dentin interface in the acid conditioned/3.3% NaOCl retreated specimen applied with All Bond 2.
- Fig.13. A TEM photograph of the resin-dentin interface in the acid conditioned specimen applied with Scotchbond Multipurpose.
- Fig.14. A TEM photograph of the resin-dentin interface in the acid conditioned/1.7% NaOCl retreated specimen applied with Scotchbond Multipurpose.
- Fig.15. A TEM photograph of the resin-dentin interface in the acid conditioned specimen applied with Superbond D-Liner.
- Fig.16. A TEM photograph of the resin-dentin interface in the acid conditioned/1.7% NaOCl retreated specimen applied with Superbond D-Liner.
- Fig.17. A TEM photograph of the resin-dentin interface in the acid conditioned/3.3% NaOCl retreated specimen applied with Superbond D-Liner.

논문사진부도①



논문사진부도②



논문사진부도③

