

## 글라스 아이오노머 시멘트와 불소함유 레진의 불소유리에 관한 연구

김 미 경<sup>1)</sup> · 이 기 수<sup>2)</sup>

불소를 유리하는 치과재료인 글라스 아이오노머 시멘트와 불소함유 레진을 대상으로 경화후의 시간경과에 따른 1일간 불소유리량을 측정하고, 이들의 경시적 변화추세를 비교 검토하기 위하여 광중합형 글라스 아이오노머 시멘트로서 치과교정용 브라켓 접착제(Orthobond<sup>®</sup>)와 충전용(Fuji GC LC<sup>®</sup>), 자가중합형 글라스 아이오노머 시멘트로서 충전용(Fuji GC II<sup>®</sup>)과 아말감 합금이 첨가된 충전용(Miracle-Mix<sup>®</sup>) 및 광중합형 불소함유 충전용 레진(Heliomolar<sup>®</sup>)을 실험재료로 하여 중합 1일, 3일, 7일, 14일, 42일, 70일 경과후 각각 불소유리량을 측정하고, 변화추세를 비교 검토하여 다음의 결론을 얻었다.

1. 전 실험기간에 걸쳐 불소함유 레진의 1일간 불소유리량은 글라스 아이오노머 시멘트에 비해 현저히 적었다.
2. 중합 70일 경과후 1일간 불소유리량은 Miracle-Mix<sup>®</sup>는 평균  $3.4\mu\text{g}/\text{cm}^2$ , Fuji GC II<sup>®</sup>가 평균  $2.7\mu\text{g}/\text{cm}^2$ , Orthobond<sup>®</sup>가 평균  $2.3\mu\text{g}/\text{cm}^2$ , Fuji GC LC<sup>®</sup>이 평균  $1.4\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 였고, 불소함유 레진인 Heliomolar<sup>®</sup>은 평균  $0.1\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 이었다.
3. 1일간 불소유리량은 자가중합형 글라스 아이오노머 시멘트와 광중합형 글라스 아이오노머 시멘트 사이에 차이를 발견할 수 없었고, 제조회사의 제품에 따라 유의한 차이가 있었다. 아말감 합금이 첨가된 Miracle-Mix<sup>®</sup>은 아말감 합금이 첨가되지 않은 다른 시멘트에 비해 현저히 많은 양의 불소를 유리하였다.
4. 모든 실험재료의 1일간 불소유리량은 중합 3일 이전까지 현저한 감소를 보였고, 중합 3일경과이후 중합 14일 이전까지 완만한 감소를, 중합 14일 이후부터 중합 70일경과까지 매우 완만한 감소추세를 보였다.

( 주요단어 : 불소유리, 글라스 아이오노머 시멘트, 불소함유 레진 )

### I. 서 론

교정식 치과 교정장치의 브라켓 주변 법랑질 탈회 현상은 교정치료중 발생할 수 있는 문제점의 하나이다<sup>1)</sup>. 이는 심미적인 문제뿐만 아니라, 치아우식증으로 진행될 수 있으므로 이를 예방하는 것은 환자와 술자 모두에게 중요한 관심사이다.

불소가 유리되는 교정용 브라켓 접착제는 항우식 효과를 가지는 불소를 환자의 협조에 의존하지 않고, 가장 탈회되기 쉬운 브라켓 주위 법랑질에 전달이 가

능하다는 점에서 교정용 브라켓 주위 법랑질의 탈회 방지를 위한 예방재료라고 할 수 있다<sup>2)</sup>.

불소를 유리하는 대표적인 재료인 글라스 아이오노머 시멘트는 장기간에 걸쳐 불소를 유리한다는 점<sup>3)</sup>과 일부 금속과 법랑질에 물리화학적으로 접착하여 법랑질의 산부식 과정이 불필요하다는 장점<sup>4)</sup>등으로 인하여 치과 교정영역에서는 교정용 밴드의 접착뿐만 아니라 교정용 브라켓 접착제로 사용되고 있다<sup>5)</sup>.

글라스 아이오노머 시멘트로부터의 불소유리는 여러 선학들의 연구<sup>9,10,11)</sup>에서 확인된 바 있다. Hattab들<sup>9)</sup>은 vivo에서 글라스 아이오노머 시멘트의 불소유리를 연구하고 실험기간동안 일정한 농도의 불소가 유

1) 경희대학교 치과대학 치과교정학교실

2) 경희대학교 치과대학 치과교정학교실 교수

Table 1. Fluoride releasing materials used in this study.

| Materials                 | Manufacturer              | Code | Type |
|---------------------------|---------------------------|------|------|
| Glass ionomer cements     |                           |      |      |
| Orthobond <sup>®</sup>    | GC industrial Corp.,Japan | O    | l, o |
| Fuji GC LC <sup>®</sup>   | GC industrial Corp.,Japan | L    | l, f |
| Fuji GC II <sup>®</sup>   | GC industrial Corp.,Japan | G    | c, f |
| Miracle-Mix <sup>®</sup>  | GC industrial Corp.,Japan | M    | c, f |
| Fluoride-containing resin |                           |      |      |
| Heliomolar <sup>®</sup>   | Vivadent Corp., USA       | H    | l, f |

c : chemical cure l : light cure f : filling material o : orthodontic adhesive

<sup>®</sup> : registrated trade mark

리된다고 하였고, Forss와 Seppä<sup>10)</sup>는 글라스 아이오노머 시멘트에서 상당량의 불소가 유리되며 인접 범랑질의 탈회를 감소시킨다고 하였으며, Forsten<sup>11)</sup>은 글라스 아이오노머 시멘트에서 2년동안 상당량의 불소가 유리됨을 보고하였다.

자가중합형 글라스 아이오노머 시멘트의 초기강도가 약한 단점과 내마모성이 약한 단점을 보완하기 위하여 광중합형 글라스 아이오노머 시멘트와 아말감 합금이 첨가된 글라스 아이오노머 시멘트가 개발되면서 이의 불소유리에 관한 다양한 연구결과들이 보고되었다. Mitra<sup>14)</sup>와 Momoi와 McCabe<sup>19)</sup>는 광중합형 글라스 아이오노머 시멘트에 광중합 반응을 위해 첨가된 레진이 불소유리를 방해하지 않으며 광중합형 글라스 아이오노머 시멘트는 자가중합형 글라스 아이오노머 시멘트와 유사한 양의 불소를 유리한다고 하였으나, Hörsted와 Larsen<sup>35)</sup>과 Takhashi<sup>18)</sup>는 광중합형 글라스 아이오노머 시멘트의 불소유리량은 제품에 따라 극소량에서부터 고농도에 이르기까지 다양하다고 하였다. 아말감 합금을 첨가한 글라스 아이오노머 시멘트의 불소유리량에 관해 Forsten<sup>27)</sup>은 아말감 합금이 첨가되지 않은 글라스 아이오노머 시멘트와 유사한 양의 불소가 유리된다고 하였으나, DeSchepper<sup>20)</sup>은 더 많은 양의 불소가 유리된다고 보고한 바 있다.

기존의 브라켓 레진 접착제에 불소를 포함시키려는 시도가 있었으나 실효를 거두지 못하였으며, Underwood<sup>6)</sup>은 레진에 불소화합물이 첨가됨에 따라 물리적 성질이 크게 저하될 뿐만 아니라 불소유리의 지속성 결여가 그 이유라고 하였다. 이러한 문제를 Rawls와 Zimmerman<sup>7)</sup>이 이온교환수지에 불소를 결합시킨 후 가교제와 희석제 등과 함께 공중합시킨 레

진을 합성하여 해결할 수 있었다고 보고한 이래, 최근에는 다수의 교정용 불소함유 레진이 사용 가능하게 되었다.

Sonis와 Snell<sup>12)</sup>과 Dijkman과 Arends<sup>30)</sup>, 사와 김<sup>32)</sup>은 불소함유 레진에서 상당량의 불소가 유리된다고 보고하였으나, Ghani<sup>13)</sup>은 불소함유 레진은 장기간의 불소유리를 나타내지 못하며 단기간에서도 극소량의 불소가 유리된다고 하였으며, Fox<sup>22)</sup>도 불소함유 레진은 매우 소량의 불소를 유리하며 이는 치료효과를 가지지 않는다고 하였다. 한편 Forsten과 Paunio<sup>17)</sup>는 실험적인 불소함유 레진에서 silicate cement와 유사한 불소유리량과 범랑질내 불소흡수를 보고하였다.

이상에서처럼 글라스 아이오노머 시멘트와 불소함유 레진의 불소유리량에 대해 논란이 있을 뿐만 아니라, 실험에 사용한 시편모양과 실험 방법, 용매의 종류 및 불소유리량 단위의 일관성 부족등으로 인해 연구결과들을 상호 비교하기가 어려웠다.

이 연구의 목표는 수종의 글라스 아이오노머 시멘트와 불소함유 레진을 실험재료로하여 경화후의 시간 경과에 따른 1일간 불소유리량을 측정하고 이들의 경시적 변화추세를 관찰하며, 실험 재료간의 불소유리량과 경시적 변화추세를 비교 검토하기 위하여 시행되었다.

## II. 실험재료 및 방법

### 가. 실험 재료

이 실험에 사용된 실험 재료는 모두 불소를 유리하는 재료로써, 광중합형 글라스 아이오노머 시멘트로는 교정용 브라켓 접착제인 Orthobond<sup>®</sup>와 충전용인

**Table 2.** Daily fluoride release after immersing experimental specimens in distilled deionized water for 1 day, 3 days, 7 days, 14 days, 42 days and 70 days. (unit :  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$  of specimen of surface)

|   | 1d          | 3d         | 7d         | 14d        | 42d        | 70d        |
|---|-------------|------------|------------|------------|------------|------------|
| M | 39.002±4.95 | 8.469±1.59 | 5.367±1.56 | 3.515±0.46 | 3.502±0.48 | 3.452±0.48 |
| G | 29.481±2.30 | 3.753±0.51 | 2.973±0.28 | 2.734±0.41 | 2.714±0.39 | 2.704±0.39 |
| O | 27.467±4.11 | 4.314±0.30 | 2.653±0.20 | 2.443±0.13 | 2.409±0.14 | 2.390±0.14 |
| L | 9.757±1.29  | 2.773±0.26 | 1.983±0.31 | 1.506±0.21 | 1.491±0.24 | 1.484±0.24 |
| H | 2.345±0.31  | 0.386±0.01 | 0.202±0.01 | 0.179±0.01 | 0.167±0.01 | 0.165±0.01 |

value : mean±SD

The vertical bars mean the similarity between the groups by the results of Duncan's multiple range test.

Fuji GC LC<sup>®</sup>를, 자가중합형 글라스 아이오노머 시멘트로는 충전용인 Fuji GC II<sup>®</sup>와 아말감 합금이 첨가된 충전용인 Miracle-Mix<sup>®</sup>를 사용하였다. 불소함유 레진은 광중합형 충전용 레진인 Heliomolar<sup>®</sup>를 사용하였으며, 각 재료의 특징소개는 Table 1에 제시하였다.

### 나. 실험 방법

#### 1. 시편의 제작

실험재료는 내경 6mm, 두께 2mm의 원주형 테프론 몰드(teflon mold)를 사용하여 원주형 시편을 제조하였다. 각 실험재료는 제조회사의 지시에 따라 혼합하여 몰드에 약간 과잉 충전한 뒤, 유리판으로 압박하여 양면을 평활하게 하였다. 양면은 초기 수분 오염이나 건조를 방지하기 위해 매트릭스 스트립으로 덮어 보호하였다. 광중합형은 60초씩 광조사하여, 자가중합형은 실온에서 각각 중합시킨 후, 37°C 상대습도 100%의 가습기속에 24시간동안 계속 중합시켜 시편을 완성하였다. 시편은 재료당 각각 15개씩 제작하였다.

뚜껑이 있는 플라스틱 시험관(polyethylene tube)에 2ml의 탈이온 증류수를 채운 다음, 완성된 시편을 넣어 뚜껑을 닫고 실온에 보관하여 시편 속의 불소가 증류수속에 유리 용해되도록 하였다. 시험관내 증류수는 전실험기간에 걸쳐 매 24시간마다 교환하였다.

#### 2. 불소농도 측정

시편을 시험관에 보관하기 시작한 후 1일, 3일, 7일, 14일, 42일, 70일이 각각 경과한 후 1일동안 유리된 불소량을 측정하였다. 시험관 속에서 시편을 꺼내고

1ml의 증류수로 시편을 헹구어서 헹군액을 시험관 속에 모으고, pH를 5.0-5.5로 유지하기 위해 1 v/v%의 TISAB III(Total Ionic Strength Adjustment Buffer Solution, Orion Corp.)를 시험관에 넣고 혼합하였다. 시험관에 유리된 불소농도는 pH/Ion meter (Model 710A, Orion, Boston, USA)에 combination fluoride-specific electrode(Model 9609, Orion, Boston, USA)를 부착시켜 측정하였다. 측정 전에 1 ppm (040906, Orion, Boston, USA)과 10ppm(040908, Orion, Boston, USA)의 불소 표준액을 사용하여 용액의 불소 이온농도를 표준화시켰다. 용액이 담긴 시험관에 전극의 끝이 충분히 담길 수 있도록 한 후, 가장 안정된 농도값을 기록하였다.

측정된 불소유리량(ppm)은 시험관내의 용액의 부피(3ml)를 곱하여 불소의 질량( $\mu\text{g}$ )을 계산한 뒤, 시편의 단위표면적( $0.941\text{cm}^2$ )으로 나누어 단위표면적당 마이크로 그램( $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ ) 단위로 나타내었다.

#### 3. 총불소유리량의 추정

중합후 1일, 3일, 7일, 14일, 42일, 70일이 경과한 후 유리된 총불소유리량을 추정하였다. 각 실험기간동안의 총불소유리량은 시간 제곱의 역수( $1/t^2$ )를 설명변수로 한 회귀 분석을 통해 총불소유리량을 추정하였다. 회귀식의 결정계수( $r^2$ )는 99%이상이었다.

#### 4. 통계처리

각 실험재료의 1일 평균 불소량과 표준편차를 구하고, 이들의 차에 대한 검정은 Duncan's multiple range test를 시행하여 유의수준 5%이하에서 차이를 인정하였다.

**Table 3.** Cumulative fluoride release after immersing experimental specimens in distilled deionized water for 1 day, 3 days, 7 days, 14 days, 42 days and 70 days. (unit :  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$  of specimen of surface)

|   | 1d          | 3d          | 7d           | 14d           | 42d           | 70d           |
|---|-------------|-------------|--------------|---------------|---------------|---------------|
| M | 39.002±4.95 | 70.234±9.32 | 92.448±13.22 | 122.097±18.95 | 232.309±40.93 | 341.179±62.77 |
| G | 29.481±2.30 | 52.048±4.26 | 66.263± 5.95 | 84.055± 8.40  | 148.779±17.78 | 212.473±27.10 |
| O | 27.467±4.11 | 48.607±6.94 | 62.064± 7.98 | 79.009± 8.77  | 140.785±11.03 | 201.600±13.24 |
| L | 9.757±1.29  | 18.440±2.45 | 26.466± 3.54 | 38.371± 5.18  | 84.044±11.54  | 129.405±17.88 |
| H | 2.345±0.31  | 4.122±0.55  | 5.181± 0.71  | 6.462± 0.91   | 11.067± 1.70  | 15.589± 2.49  |

value : mean±SD

The vertical bars mean the similarity between the groups by the results of Duncan's multiple range test.

**Table 4.** Change in experimental specimens' fluoride release during 24 hours with relation to experimental time. (unit :  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$  of specimen of surface)

|     | M           | G           | O           | L          | H          |
|-----|-------------|-------------|-------------|------------|------------|
| 1d  | 39.002±4.95 | 29.481±2.30 | 27.467±4.11 | 9.757±1.29 | 2.345±0.31 |
| 3d  | 8.469±1.59  | 3.753±0.51  | 4.314±0.30  | 2.773±0.26 | 0.386±0.01 |
| 7d  | 5.367±1.56  | 2.973±0.28  | 2.653±0.20  | 1.983±0.31 | 0.202±0.01 |
| 14d | 3.515±0.46  | 2.734±0.41  | 2.443±0.13  | 1.506±0.21 | 0.179±0.01 |
| 42d | 3.502±0.48  | 2.714±0.39  | 2.409±0.14  | 1.491±0.24 | 0.167±0.01 |
| 70d | 3.452±0.48  | 2.704±0.39  | 2.390±0.14  | 1.484±0.24 | 0.165±0.01 |

value : mean±SD

The vertical bars mean the similarity between the groups by the results of Duncan's multiple range test.

### III. 실험성적

이 실험에서 사용한 글라스 아이오노머 시멘트와 불소함유 레진의 불소유리량 사이에는 유의한 차이가 있었다. Table 2와 Fig.1은 각 재료의 실험 시간 경과 후 1일간의 불소유리량 및 표준편차를 나타낸 표와 도표이다. 각 실험재료의 불소유리량의 차이를 검정한 결과를 유의차가 없는 재료끼리 집락화하여 Table 2에 수직선으로 표시하였다.

중합 1일 경과후의 1일간 불소유리량은 아말감 합금이 첨가된 자가중합형 글라스 아이오노머 시멘트인 M이  $39.0\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 로 가장 높게 나타났으며, 자가중합

형 충전용 글라스 아이오노머 시멘트인 G와 광중합형 교정용 접착제인 O가 각각  $29.4\mu\text{g}/\text{cm}^2$ ,  $27.4\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 로 그 다음으로 많은 양의 불소를 유리하였으나 통계상 유의한 차이는 없었으며, 광중합형 충전용 글라스 아이오노머 시멘트 L은  $9.7\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 의 불소유리량을 보였다. 광중합형 충전용 불소함유 레진인 H는  $2.3\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 를 나타내어 가장 적은 양의 불소를 유리하였다.

중합 3일, 7일, 14일, 42일 경과후의 1일 불소유리량은 실험기간이 경과하면서 계속 감소하였으며(Fig.1), 70일 경과 후에는 M이  $3.4\mu\text{g}/\text{cm}^2$ , G가  $2.7\mu\text{g}/\text{cm}^2$ , O가  $2.3\mu\text{g}/\text{cm}^2$ , L은  $1.4\mu\text{g}/\text{cm}^2$ , H는  $0.1\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 의 불소를 유리하였다(Table 3).

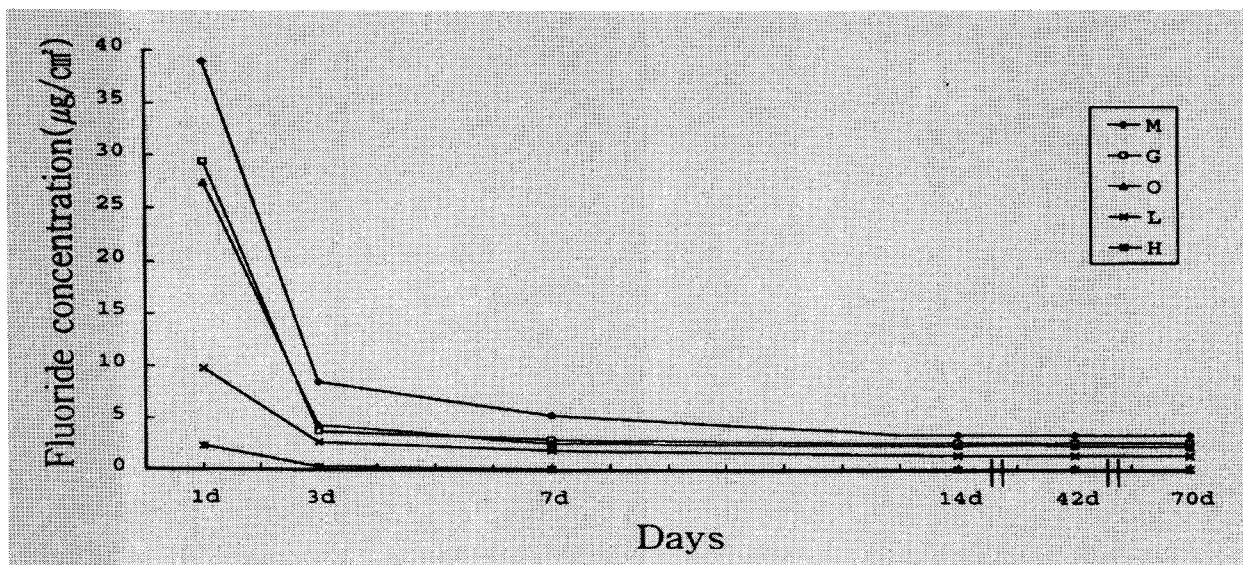


Fig. 1. Change in experimental specimens' fluoride release ( $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ ) during 24 hours with relation to experimental time.

통계적 방법을 이용하여 추정된 70일간의 총불소유리량은 M이  $341.1\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 으로 가장 높게 나타났고, G는  $212.4\mu\text{g}/\text{cm}^2$ , O는  $201.6\mu\text{g}/\text{cm}^2$ , L은  $129.4\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 의 감소하는 순서로 유리하였으며, H는  $15.5\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 으로 가장 적은 총불소유리를 보였다. 따라서 이 실험에 이용된 불소함유 레진은 글라스 아이오노머 시멘트보다 현저히 적은량의 불소를 유리하였으며, 글라스 아이오노머 시멘트 중에서도 제품마다 총불소유리량 사이에 현저한 차이를 나타내었다. 중합 방식이 다른 실험재료의 총불소유리량은 자가중합형이며 아말감 합금이 첨가된 글라스 아이오노머 시멘트인 M이 가장 많은 양의 불소를 유리하였고 광중합형인 L이 가장 적은 양의 불소를 유리하였으나, 자가중합형 글라스 아이오노머 시멘트인 G와 광중합형 글라스 아이오노머 시멘트인 O 사이에 유의차가 없는 것으로 보아 총불소유리량은 중합방식보다는 제품의 특성에 따라 결정되는 것으로 나타났다(Table 3). 글라스 아이오노머 시멘트에 아말감 합금이 첨가된 M은 아말감 합금이 첨가되지 않은 다른 글라스 아이오노머 시멘트에 비해 현저히 많은 양의 불소를 유리하여 제품의 조성에 따라 불소유리량에 차이를 보였다.

1일 불소유리량의 경시적 추세를 Table 4에 제시하였다. 시간이 경과함에 따라 모든 실험 재료의 1일 불소유리량은 지속적인 감소추세를 보였다. 모든 실험재료의 불소유리량은 중합 1일경과후 3일 이전에 때

우 현저히 감소한 후, 14일이 될때까지는 완만한 감소추세를, 중합 70일이 경과될 때까지 통계적으로 유의한 매우 완만한 감소추세를 보였다 (Fig.1).

#### IV. 총괄 및 고안

불소는 법랑질에 흡수되어 fluorapatite와 calcium fluoride를 형성하여 법랑질의 용해도를 감소시키고, 재석회화를 용이하게 하며<sup>16)</sup> 세균의 활성도와 조성에 영향을 주어 세균에 의해 생성되는 산의 양을 감소시켜<sup>36)</sup> 항우식 효과를 나타내는 것으로 알려져 있다.

이러한 장점으로 인하여 불소를 유리하는 재료인 글라스 아이오노머 시멘트와 불소함유 레진이 치과 교정 영역에 사용되고 있다.

이 연구에서는 조성이 다양한 수종의 글라스 아이오노머 시멘트와 불소함유 레진을 실험재료로 하여 불소유리량과 양상을 관찰하였다. Mitra<sup>14)</sup>와 Momoi와 McCabe<sup>19)</sup>는 광중합형 글라스 아이오노머 시멘트는 자가중합형 글라스 아이오노머 시멘트와 유사량의 불소가 유리한다고 하였으나, Hörsted와 Larsen<sup>35)</sup>과 Takhashi들<sup>18)</sup>은 광중합형 글라스 아이오노머 시멘트의 불소유리량은 제품에 따라 극소량에서부터 고농도에 이르기까지 다양하다고 하였다. Wilson<sup>25)</sup>은 광중합형 글라스 아이오노머 시멘트내의 레진이 시멘트내의 물의 일부를 교체하여 불소유리가 감소될

수 있다고 하였고, Momoi와 McCabe<sup>19)</sup>는 광중합형 글라스 아이오노머 시멘트에 포함된 레진기질에 의해 불소이온이 견고하게 포획되어 유리되는 것이 방해받을 수 있음을 추측하였다. 그러나 이들은 실제로 실험한 결과 광중합형 글라스 아이오노머 시멘트가 자가중합형 글라스 아이오노머 시멘트와 유사량의 불소를 유리함을 보고하면서, 이에 대한 설명으로 첨가된 레진이 불소가 확산될 수 있을 정도로 충분한 양의 물을 흡수할 수 있는 것을 들었다.

광중합형 글라스 아이오노머 시멘트내의 레진의 유형과 양이 불소유리량에 영향을 주므로<sup>18)</sup> 각 실험마다 사용한 실험 재료의 차이도 광중합형 글라스 아이오노머 시멘트의 불소유리에 관한 연구결과가 다양한 요인의 하나로 생각된다.

이 실험에서는 글라스 아이오노머 시멘트의 중합 방식에 따른 불소유리량에는 유의한 차이가 없었으며 제조회사의 제품의 특성에 따라 현저한 차이를 보였다. 기존의 글라스 아이오노머 시멘트의 내마모성을 증진시키기 위해 아말감 합금을 첨가한 글라스 아이오노머 시멘트인 Miracle-Mix<sup>®</sup>는 아말감 합금이 첨가되지 않은 글라스 아이오노머 시멘트에 비해 현저히 많은 양의 불소를 유리하였다. 이는 DeSchepper<sup>20)</sup>의 연구결과와 일치하는 것으로써 첨가된 아말감 합금이 시멘트 입자와 화학적 결합을 하지 않음으로써 용매에 노출되는 표면적이 증가되기 때문으로 보인다<sup>20)</sup>. 글라스 아이오노머 시멘트의 불소유리는 노출되는 표면적에 비례하는 것으로 알려져 있다.<sup>38)</sup>

교정용 브라켓 접착제로 시판되고 있는 글라스 아이오노머 시멘트인 Orthobond<sup>®</sup>의 불소유리와 항우식 효과에 관한 연구는 아직 미흡한 상태이며, 이 실험에서는 기존의 자가중합형 충전용 글라스 아이오노머 시멘트와 유사한 총불소유리량을 나타내었다.

DeSchepper<sup>20)</sup>과 Bishara<sup>21)</sup>은 글라스 아이오노머 시멘트의 불소유리를 2가지 과정으로 설명하였다. 첫번째는 initial burst과정으로 재료의 표면으로부터 고농도의 불소가 유리된 후 급격히 감소하며, 두번째인 bulk diffusion과정에서는 소량의 불소가 비교적 장기간 유리되게 된다고 하였다. 이 실험에 사용된 글라스 아이오노머 시멘트에서도 동일한 양상의 불소유리가 확인되었다. 모든 실험재료에서 중합 1일에 가장 많은 양의 불소유리를 보였으며, 중합 1일 이후 3일이전까지 현저한 감소를 보인 후 14일이전까지 완만한 감소를, 중합 14일 이후부터 70일까지는 매우 완만한 감소추세를 보였다.

이 실험에서는 불소함유 레진의 불소유리량은 글라스 아이오노머 시멘트에 비해 현저히 적은 것으로 나타났으며, 중합 70일경과후의 1일 불소유리량은 0.16 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 로 소량으로 나타났다. 유리된 불소량의 임상적 의의에 대해서는 명확하게 결정되지 않은 상태이다. Dijkman과 Arends<sup>30)</sup>은 1달동안 200-300 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 의 총불소유리량이 법랑질 탈회를 완전히 방지할 수 있는 농도이며, 이는 불소함유 레진의 불소유리량의 약 40배라고 하였으며, Fejerskov<sup>38)</sup>은 1-3ppm을 항우식 효과를 보이는 농도로 제시하였다. 한편, Varughese와 Moreno<sup>37)</sup>은 0.0025mM(0.05ppm)의 불소농도에도 재석회화가 일어난다고 하였으며, Borsboon<sup>34)</sup>은 0.02-0.12ppm을, Hörsted와 Larsen<sup>35)</sup>과 Larsen<sup>36)</sup>은 1ppm의 비교적 낮은 농도를 항우식 효과를 보이는 농도로 보고하였다. 그러나 유리된 불소의 항우식효과를 논하기 위해서는 임상적 실험이 필요하다. 정<sup>8)</sup>과 박<sup>33)</sup>은 불소함유 교정용 레진으로 충전시 법랑질 인공우식의 깊이가 감소하고 재석회화가 촉진됨을 보여 항우식 효과를 보고한 바 있으며, Dijkman과 Arends<sup>30)</sup>와 Seppä<sup>31)</sup>도 이와 유사한 연구결과를 보고하였다. 반면, Eliades<sup>24)</sup>은 불소함유 레진의 불소유리는 급격히 감소하여 매우 소량으로 나타나며, 기존의 레진과 비교시 법랑질내 불소농도의 유의한 차이가 없음을 보고하여 불소함유 레진의 항우식효과는 논란이 되고 있다.

Hicks<sup>15)</sup>이 보고하였듯이 항우식 효과를 나타내기 위해서는 불소의 농도보다는 적용빈도가 더 중요하므로 2년이상 소요되는 고정성 교정 장치 장착기간 동안 지속적으로 불소를 유리하는 것이 필요하다. 이 실험은 70일동안 글라스 아이오노머 시멘트와 불소함유 레진의 불소유리를 관찰하였으며, 중합 70일후의 1일간 불소유리량은 글라스 아이오노머 시멘트중 Miracle-Mix<sup>®</sup>는 3.4 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ , Fuji GC II<sup>®</sup>는 2.7 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ , Orthobond<sup>®</sup>는 2.3 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ , Fuji GC LC<sup>®</sup>은 1.4 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 로 나타났으며, 불소함유 레진인 Heliomolar<sup>®</sup>는 0.1 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 의 불소유리를 보여 실험기간동안 비교적 지속적으로 불소가 유리됨을 알 수 있었다. 장기간에 걸친 불소유리에 관한 선학들의 연구에 의하면 Wilson<sup>25)</sup>은 글라스 아이오노머 시멘트의 18개월이상의 불소유리를 보고하였으며, Swartz<sup>26)</sup>은 12개월동안의 불소유리를, Mitra<sup>14)</sup>와 Forsten<sup>11)</sup>은 2년후에도 글라스 아이오노머 시멘트에서 불소가 유리됨을 보고하였다. 불소함유 레진의 불소유리에 관해서는 Fosten<sup>27)</sup>은 1년후에도 불소함유 레진에서 불소가 유리된다

고 하였으며, Temin과 Csuros<sup>28)</sup>는 4년간의 불소유리를 보고하였다. 그러나 Ghani들<sup>13)</sup>은 불소함유 레진은 장기간의 불소유리를 나타내지 못하며 단기간에서도 극소량의 불소가 유리된다고 하였다. 이상에서 볼 때 글라스 아이오노머 시멘트에서는 비교적 장기간에 걸친 불소유리가 예상되는 반면, 불소함유 레진의 불소유리의 지속성은 논란이 되고 있는 상태이며 더 많은 연구가 필요하리라 생각된다.

연구방법은 실험재료의 불소유리에 영향을 주게 되며, El-Mallakh들<sup>29)</sup>의 보고에 의하면 증류수에서 측정된 불소의 유리량은 실제 구강내에서 일어나는 반응을 실제적으로 표현하지 못하며, 증류수와 인공 타액에서 측정된 불소 유리량이 다르게 나타났다고 하였다. 그러나 Hörsted와 Larsen<sup>35)</sup>은 인공 타액은 pellicle이나 치면 세균막을 형성할 뿐만 아니라 그 자체가 diffusion barrier로 작용한다고 하였으며 Larsen들<sup>36)</sup>은 인공 타액에서의 결과와 증류수에서의 결과 중 어느 것이 보다 실제와 가깝다고 말하기는 어렵다고 하였다. 본 실험에서는 실험의 편의성을 위하여 증류수를 사용하였으므로 측정된 불소유리농도가 구강내 환경에서 그대로 재현되기란 어려운 점을 고려하여 임상적으로 응용하여야 할 것이다.

### V. 결 론

불소를 유리하는 치과재료인 글라스 아이오노머 시멘트와 불소함유 레진을 대상으로 경화후의 시간경과에 따른 1일간 불소유리량을 측정하고, 이들의 경시적 변화추세를 비교 검토하기 위하여 광중합형 글라스 아이오노머 시멘트로서 치과교정용 브라켓 접착제(Orthobond<sup>®</sup>)와 충전용(Fuji GC LC<sup>®</sup>)을, 자가중합형 글라스 아이오노머 시멘트로서 충전용(Fuji GC II<sup>®</sup>)과 아말감 합금이 첨가된 충전용(Miracle-Mix<sup>®</sup>) 및 광중합형 불소함유 충전용 레진(Heliomolar<sup>®</sup>)을 실험재료로 하여 중합 1일, 3일, 7일, 14일, 42일, 70일 경과 후 각각 불소유리량을 측정하고, 변화추세를 비교 검토하여 다음의 결론을 얻었다.

1. 전 실험기간에 걸쳐 불소함유 레진의 1일간 불소유리량은 글라스 아이오노머 시멘트에 비해 현저히 적었다.
2. 중합 70일 경과 후 1일간 불소유리량은 Miracle-Mix<sup>®</sup>는 평균 3.4 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ , Fuji GC II<sup>®</sup>가 평균 2.7 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ , Orthobond<sup>®</sup>가 평균 2.3 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ , Fuji GC LC<sup>®</sup>이 평균

1.4 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 였고, 불소함유 레진인 Heliomolar<sup>®</sup>는 평균 0.1 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 이었다.

3. 1일간 불소유리량은 자가중합형 글라스 아이오노머 시멘트와 광중합형 글라스 아이오노머 시멘트 사이에 차이를 발견할 수 없었고, 제조회사의 제품에 따라 유의한 차이가 있었다. 아말감 합금이 첨가된 Miracle-Mix<sup>®</sup>은 아말감 합금이 첨가되지 않은 다른 시멘트에 비해 현저히 많은 양의 불소를 유리하였다.
4. 모든 실험재료의 1일간 불소유리량은 중합 3일이 전까지 현저한 감소를 보였고, 중합 3일경과이후 중합 14일이전까지 완전한 감소를, 중합 14일이후부터 중합 70일경과까지 매우 완전한 감소추세를 보였다.

### 참고 문헌

1. Zachrisson, B.U. : JCO interviews on iatrogenic damage in orthodontic treatment, Part I. J. Clin. Orthod., 12 : 102-113, 1978.
2. Gwinnet, J.A. and Ceen, F. : Plaque distribution on bonded brackets, Am. J. Orthod., 75 : 667-677, 1979.
3. Seppä, L., Forss, H. and Ögaard, B. : The effect of fluoride application on fluoride release and the antibacterial action of glass ionomers, J. Dent. Res., 72 : 1310-1314, 1993.
4. Cook, P.A. and Youngson, C.C. : An in vitro study of the strength of a glass ionomer cement in the direct bonding of orthodontic brackets, Br. J. Orthod., 15 : 257-260, 1987.
5. Brown, D. : Orthodontic material update / Orthodontic band cements, Br. J. Orthod., 16 : 127-131, 1989.
6. Underwood, M.L., Rawls, H.R. and Zimmerman, B.F. : Clinical evaluation of a fluoride-exchanging resin as an orthodontic adhesive, Am. J. Orthod., 96 : 93-99, 1989.
7. Rawls, H.R. and Zimmerman, B.F. : Fluoride-exchanging resin for caries protection, Caries Res., 17 : 32-43, 1983.
8. 정광조, 이상훈, 한세현 : 불소함유 교정용 레진이 법랑질 인공우식과 재석회화에 미치는 영향에 관한 연구, 대한소아치과학회지, 19(1) : 334-345, 1992.
9. Hattab, F.N., Mork, N.Y.C. and Agnew, E.C. : Artificially formed caries-like lesions around restorative materials, J.A.D.A., 118 : 193-197, 1988.
10. Forss, H. and Seppä, L. : Prevention of enamel demineralization adjacent to glass ionomer filling materials, Scand. J. Dent. Res., 98 : 173-178, 1990.
11. Forsten, L. : Fluoride release and uptake by glass ionomers, Scand. J. Dent. Res., 99 : 241-245, 1991.
12. Sonis, A.L. and Snell, W. : An evaluation of a fluoride-

- releasing, visible light-activated bonding system for orthodontic bracket placement, *Am. J. Orthod.*, 95 : 306-311, 1989.
13. Ghani, S.H.A., Creanor, S.L., Luffingham, J.K. and Foye, R.H. : An Ex Vivo Investigation into the Release of Fluoride from Fluoride-containing Orthodontic Bonding Composites, *Br. J. Orthod.*, 21 : 239-243, 1994.
  14. Mitra, S.B. : In vitro Fluoride Release from a Light-cured Glass-ionomer Liner/Base, *J. Dent. Res.*, 70(1) : 75-78, 1991.
  15. Hicks, M.J., Flaitz, C.M. and Silverstone, L.M. : Initiation and progression of caries-like lesion of enamel : effect of periodic treatment with synthetic saliva and sodium fluoride, *Caries Res.*, 19 : 481-489, 1985.
  16. Tay, W.M. and Brader, M. : Fluoride ion diffusion from polyalkenoate(glass-ionomer) cements, *Biomaterials.*, 9 : 454-456, 1988.
  17. Forsten, L. and Paunio, I.K. : Fluoride release by silicate cements and composite resins, *Scand. J. Dent. Res.*, 80 : 515-519, 1972.
  18. Takahashi, K., Emilson, C.G. and Birkhed, D. : Fluoride release in vitro from various glass ionomer cements and resin composites after exposure to NaF solutions, *Dent. Mater.*, 9 : 350-354, 1993.
  19. Momoi, Y. and McCabe, J. F. : Fluoride release from light-activated glass ionomer restorative cements, *Dent Mater.*, 9 : 151-154, 1993.
  20. DeSchpper, E.J., Berry III, E.A., Cailleteau, J.G. and Tate, W.H. : A comparative study of fluoride release from glass-ionomer cements, *Quint. Int.*, 22 : 215-220, 1991.
  21. Bishara, S.E., Swift, E.J. and Chan, D.C.N. : Evaluation of fluoride release from an orthodontic bonding system, *Am. J. Ortho.*, 100 : 106-109, 1991.
  22. Fox, N.A. : Fluoride release from orthodontic bonding materials An in vitro study, *Br. J. Orthod.*, 17 : 293-298, 1990.
  23. Wilson, A.D. : Resin-modified glass-ionomer cements, *Int. J. Prosthodont.*, 3 : 425-429, 1990.
  24. Eliades, T., Viazis, A.D. and Eliades, G. : Enamel fluoride uptake from an experimental fluoride-releasing orthodontic adhesives, *Am. J. Orthod.*, 101 : 421-424, 1992.
  25. Wilson, A.D., Grossman, D.R. and Kuhn, A.T. : The Release of Fluoride and Other Chemical species from a Glass Ionomer Cement, *Biomaterials.*, 6 : 431-433, 1985.
  26. Swartz, M.L., Phillips, R.W. and Clark, H.E. : Long-term F Release from Glass-ionomer Cements, *J. Dent. Res.*, 63 : 158-160, 1984.
  27. Fosten, L. : Short- and long-term fluoride release from glass ionomers and other fluoride-containing filling materials in vitro, *Scand. J. Dent. Res.*, 98 : 179-185, 1990.
  28. Temin, S.C. and Csuros, Z. : Long-term fluoride release from a composite restorative, *Dent. Mater.* [accepted for publication]
  29. El Mallakh, B.F. and Sarkar, N.K. : Fluoride release from glass ionomer cements in de-ionized water and artificial saliva, *Dent Mater.*, 6 : 118-122, 1990.
  30. Dijkman, G.E.H.M. and Arends, J. : Secondary Caries in situ around Fluoride-releasing Light-Curing Composites : A Quantitative Model Investigation on Four Materials with a Fluoride Content between 0 and 26 vol %, *Caries Res.*, 26 : 351-357, 1992.
  31. Seppä, L., Torppa-Saarinén, E. and Luoma, H. : Effect of different glass ionomers on the acid protection and electrolyte metabolism of *Streptococcus mutans*. *Ingbritt, Caries Res.*, 26 : 434-438, 1992.
  32. 사우경, 김용기 : 글라스 아이오노머와 레진수복물 변연의 우식내성에 관한 비교실험 연구, *대한소아치과학회지*, 19 : 110-119, 1992.
  33. 박근철, 김용기 : 불소가 함유된 교정용 레진의 집착강도 및 항우식 효과에 관한 연구, *대한소아치과학회지*, 20(1) : 145-154, 1993.
  34. Borsboon, PCF., Mei, H.C. and Arends, J. : Enamel lesion formation with and without 0.12ppm F in solution, *Caries Res.*, 19 : 396-402, 1985.
  35. Hörsted, B.P. and Larsen, M.J. : Release of fluoride from light cured lining materials, *Scand. J. Dent. Res.*, 99 : 86-88, 1991.
  36. Larsen, M.J., Fehr, F.R. and Birkeland, J.M. : Effect of fluoride on the saturation of an acetate buffer with respect to hydroxyapatite, *Arch Oral Biol.*, 21 : 723-728, 1976.
  37. Varughese, K. and Moreno, E.C. : Crystal growth of calcium apatites in dilute solutions containing fluorides, *Calcif. Tissue Int.*, 33 : 431-439, 1981.
  38. Fejerskov, O., Thylstrup, A. and Larsen, M.J. : Rational use of fluorides in caries prevention, *Acta. Odontol. Scand.*, 39 : 241-249, 1981.



- ABSTRACT -

## IN VITRO STUDY ON THE FLUORIDE RELEASE FROM GLASS IONOMER CEMENTS AND A FLUORIDE-CONTAINING RESIN

Mi-Kyung Kim, Ki-Soo Lee

*Department of Orthodontics, Graduate school, Kyung Hee University*

In order to resolve enamel demineralization around orthodontic bracket, fluoride-releasing materials, glass ionomer cements and fluoride-containing resin, were introduced in orthodontic department. There were many studies about their fluoride release, but their results were controversial.

The purpose of this study was to clarify the pattern and amounts of fluoride release from glass ionomer cements and a fluoride-containing resin during 70 days in vitro.

Disc shaped specimens were prepared and immersed in polyethylene tube containing 2ml distilled deionized water. The daily amounts of the fluoride released from each specimens were measured after experiment 1 day, 3 days, 7 days, 14 days, 42 days and 70 days. They were measured by fluoride-specific electrode combined pH/Ion meter.

The following results were as follow,

1. Fluorides released from fluoride-containing resin during 1 day were significantly less than those from glass ionomer cements.
2. On experiment 70 days, mean daily amounts of fluoride released from Miracle-Mix<sup>®</sup> were  $3.4\mu\text{g}/\text{cm}^2$ , those from Fuji GC II<sup>®</sup> were  $2.7\mu\text{g}/\text{cm}^2$ , those from Orthobond<sup>®</sup> were  $2.3\mu\text{g}/\text{cm}^2$ , those from Fuji GC LC<sup>®</sup> were  $1.4\mu\text{g}/\text{cm}^2$  and those from fluoride-containing resin, Heliomolar<sup>®</sup>, were  $0.1\mu\text{g}/\text{cm}^2$ .
3. There were no significant differences in daily amounts of fluoride released from between self-curing glass ionomer cements and light-curing glass ionomer cements. Amounts of released fluoride varied among commercially available products.
4. In all experimental materials, amounts of released fluoride decreased rapidly until experimental 3 days and then decreased slowly until 14 days and more slowly until 70 days.

KOREA. J. ORTHOD. 1998 ; 28 : 399-407

※ **Key words** : fluoride release, glass ionomer cement, fluoride-containing resin.