

SrF₂계 충전재를 함유한 광중합형 복합레진의 특성

김희정 · 김경남* · 최병재 · 이종갑

연세대학교 치과대학 소아치과학교실, 치과재료학교실*

국문초록

기존의 불소방출 복합레진보다 많은 양의 불소를 방출시키기 위해 총 복합레진 중 불소의 함량이 각각 8, 16, 24wt%가 되도록 SrF₂계 충전재를 첨가하여 3종의 수복용 불소방출 복합레진 시험군(VF8, VF16, VF24)을 제조하고 이에 대한 물리적 성질과 세포독성 및 불소방출량을 기존의 복합레진 제품인 Heliomolar(HE), Veridonfil(VE), Z100(ZH), Aelitefil(AE) 등의 대조군과 비교 시험하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

1. 시험군의 3점 굽힘강도는 ZH에 비해서는 낮았으나, 다른 대조군인 AE, VE와 비슷하였고, HE보다는 우수하였으며, 시험군 간의 유의차는 없었다(p<0.05).
2. 시험군의 표면경도는 ZH보다 낮았고, AE, VE와 유사하였으며, 불소 방출 대조군인 HE보다는 높았다(p<0.05). 시험군 중에서는 VF16, VF24가 VF8에 비해 표면경도가 높았다(p<0.05).
3. 시험군의 마모도는 대조군인 HE, ZH보다 낮았으며, 시험군 중에서는 VF16, VF24가 VF8에 비해 낮은 마모도를 나타내었다(p<0.05).
4. 시험군의 물흡수도는 대조군인 HE, VE, AE와 유사하였으며, ZH보다는 낮았다(p<0.05). 시험군의 용해도는 대조군인 HE와 유의차가 없었으며, VE, ZH, AE보다 높은 용해도를 나타내었다(p<0.05).
5. 시험군은 대조군인 HE보다 9~23배 많은 양의 불소를 방출하였으며, 시험군의 불소방출량은 SrF₂계 충전재의 함유량과 비례하였다.
6. 시험군과 대조군은 모두 약한 정도의 세포독성을 나타내었다.

이상의 실험결과에서 SrF₂계 충전재를 첨가한 불소방출 복합레진 시험군의 물리적 성질과 세포독성은 기존의 복합레진과 유사한 것으로 나타났으며, 불소방출량은 기존의 불소방출 복합레진보다 현저히 높아 이차우식증에 대한 항우식효과도 높을 것으로 사료되었다.

주요어 : SrF₂계 충전재, 복합레진, 기계적 성질, 불소방출, 세포독성

I. 서 론

치의학 분야에서 치아 우식증은 아직 해결되지 않은 문제로 남아 있으며, 이에 대한 수복치료와 더불어 우식예방에 관한 연구 및 노력이 꾸준히 이어지고 있다. 치아 우식증은 표층이 손상되지 않은 경우에는 우식부위의 재석회화가 가능한 동적인 과정이기 때문에¹⁾ 초기우식증의 재석회화와 이차우식증의 예방을 위한 많은 연구가 이루어져 왔으며, 그 결과 불소가 효과적인 방법의 하나로 입증되었다. 불소의 항우식 효과는 재석회화의 촉진, 법랑질의 용해도 감소, 세균활성의 억제 및 세균대사의 방해 등이며²⁻⁴⁾ 치질에 흡수된 불소는 불화인회석(fluoroapatite)을 함유한 법랑질 결정체를 형성하여 초기병소의 재석회

화를 증가시킨다고 보고되었다³⁾.

1870년대부터 치과 수복재로 사용되어온 실리케이트 시멘트로 충전된 와동 주위에 이차우식증이 거의 발생하지 않는다는 사실이 1940년대에 발견되었으며⁵⁾ 이러한 이차우식증 감소의 원인이 실리케이트 시멘트의 제조과정에서 첨가된 불소가 계속적으로 방출되고 인접 법랑질로 흡수되어 용해도가 감소되기 때문이라는 사실이 확인된 후⁶⁾ 치과재료에 불소를 첨가하려는 연구가 시도되어왔으며 아말감, 와동이장재, 접착용 시멘트 등에 불소를 첨가한 경우 불소가 방출되었다^{7,8)}.

수복재로 오랫동안 사용되어온 아말감에 불소를 첨가한 경우 수복물 주위의 법랑질의 용해도와 우식양병소 발생빈도를 감소시키나^{9,10)} 수은 함유로 인한 인체유해성의 가능성과 변연파절,

부식, 치아와의 결합력의 결여와 같은 여러 문제점이 제기되어 왔다. 또한 불소를 방출하는 치과재료 중 최근 가장 많이 사용되고 있는 글래스 아이오노머 시멘트는 항우식 효과가 높은 것으로 알려져 있으나^{11,12)} 복합레진에 비해 표면활택성과 심미성이 떨어지며 교합압에 대한 저항성이 높지 못하여 파절되기 쉬운 단점이 있으며^{13,14)} 상아질에 대한 전단 결합강도가 상아질 접착제를 이용하여 접착된 복합레진에 비해 낮다¹⁵⁾.

치과용 복합레진은 레진 기질에 무기 충전재(filler)를 첨가한 입자강화형 복합재료로 우수한 색조 재현성을 갖고 있다. 1962년 Bowen이 Bis-GMA 복합레진을 개발한 이후 치과 수복재로서 레진의 이용은 점점 증가하고 있으며, 조성 변화에 따라 물성이 개선되어 왔고, 우식예방을 위해 불소를 첨가하려는 노력이 계속되어, 수복재, 치면열구 전색재, 교정용 브라켓 접착제 등으로 불소방출 복합레진이 개발, 연구되어 왔다¹⁶⁻¹⁹⁾.

불소를 방출하는 복합레진의 제조에는 음이온교환수지 안에 불소를 mobile ion charge로서 결합시켜 레진을 합성하는 불소교환레진(Fluoride exchange resin)¹⁷⁻¹⁹⁾과 불소를 방출할 수 있는 첨가제로 불소염과 불소방출 충전재 등을 사용하는 방법이 사용되었다²⁰⁻²⁵⁾. 불소교환레진의 경우 불소는 기질에 결합되어 있고 다른 음이온과 교환되면서 불소이온이 방출되며 기질이 재구성되므로 구조적 완성도가 유지되지만, 구치부 수복에 사용하기에는 변색, 안정성 등 여러 성질이 적합하지 않다. 불소교환레진에서 불소가 방출되려면 물이 레진 기질 내로 확산되어 불소를 방출시키는 화학적 반응을 일으켜야 하며 이러한 반응에 의해 불소가 외부로 방출된다. 이 기전을 이용하여 개발된 불소교환레진은 acrylic-amine-BF₃ salt²⁶⁾, methacryloyl fluoride²⁷⁾와 acrylic-amine-HF salt¹⁹⁾ 등으로 치면열구전색재와 교정용 브라켓 접착제로 사용시 불소가 방출되었으며 이차우식증에 대한 저항효과가 있었다고 보고되었다.

수용성 불소염인 NaF를 레진 기질에 첨가하여 제조한 복합레진인 FluorEver (Macro Chem Corp, U.S.A.)은 불소를 방출하였고, 방출된 불소는 인접 법랑질에 흡수되었다^{21,23-25)}. NaF를 수용성 염으로 첨가하였을 때 물리적 성질은 유지되었으며, 불소방출량은 글래스 아이오노머 시멘트보다 적었으나 항우식 효과가 있을 것으로 예측되었다^{23,25)}. 그러나 불소염이 물에 쉽게 용해되어 레진 내에 기포를 형성할 수 있으므로 불소가 방출된 후 물리적, 기계적 성질이 변할 것으로 예상된다²⁸⁾.

또 다른 방법은 불소를 방출하는 충전재(filler)를 첨가시키는 것으로 불소가 방출되어도 적절한 물리적, 기계적 성질이 유지된다^{20,22)}. Heliomolar(Vivadent, Lichtenstein)와 Tetric(Vivadent, Lichtenstein) 등은 구치부 수복용 복합레진으로 방사선 불투과성을 얻기 위하여 제조자가 첨가한 거의 불용성인 5vol%의 Ytterbium trifluoride(YbF₃)로부터 불소가 방출된다^{20,29-34)}. 불소를 방출하는 첨가제로 불소염과 불소방출 충전제를 사용한 레진에서도 역시 물이 레진기질을 통해 확산되어 불소를 용해시키면 불소가 외부로 방출된다.

불소방출 복합레진에서의 불소방출량에 관한 연구에서 불소가 4~5년간 계속적으로 방출되었음이 보고되었으나^{24,31)}, 글래

스 아이오노머 시멘트에 비해 2~10% 정도의 적은 양이었다^{23,31,32,34,35)}. 또한 Cao 등³⁶⁾, Strother 등³³⁾은 글래스 아이오노머 시멘트가 복합레진보다 300배정도 많은 양의 불소를 방출하였으며, 불소방출 복합레진은 거의 불소를 방출하지 못하였다는 연구 결과를 보고하였다.

불소방출 복합레진의 항우식 효과에 대한 많은 연구가 이루어져 왔는데 Arends 등²⁹⁾, Dijkman 등³⁷⁾은 불소방출 복합레진으로 충전한 경우 우식증의 깊이가 감소하고 광물질 소실이 적었음을, Arends 등³⁰⁾, Tanaka 등¹⁸⁾, Temin과 Csuros²⁴⁾는 불소방출 복합레진 주위의 법랑질에 불소가 흡수되었음을 보고하였다. 그러나 고³⁸⁾, Dionysopoulos 등^{11,39)}, Kraft 등⁴⁰⁾은 항우식 효과가 글래스 아이오노머 시멘트에서만 나타나고 불소방출 복합레진에서는 미약하다는 상반된 연구결과를 보고하였다.

이에 본 연구에서는 불소함유량을 증가시킨 새로운 불소방출 복합레진을 개발하여 이의 불소방출량을 기존의 불소방출 복합레진과 비교하였으며, 또한 여러 물성과 세포독성을 기존의 여러 복합레진과 비교하였다.

II. 연구재료 및 방법

1. 연구재료

1) 단량체

본 연구에서 시험군의 유기단량체 기질은 아크릴계 모노머로 Bis-hydroxymethacryloxy-propyloxy-phenylpropane와 Bis-GMA를, 희석제로 Triethylene glycol dimethacrylate를 사용하였고, 또한 Urethane 계 모노머를 첨가하였다. 광개시제와 첨가제를 첨가하여 최종적인 불소방출 복합레진의 유기단량체 기질을 제조하였다.

2) 무기충진재의 silane 처리

초산과 2-이소프로필 알콜 혼합용액에 hybrid 충전재와 방사선 불투과성 충전재를 정량 투입하여 3시간 교반하였다. Coupling agent인 γ -methacryl-oxypolytrimethoxy silane(γ -MPS)를 초산과 2-이소프로필 알콜 혼합용액에 정량 첨가하고 4시간 동안 혼합하였다. 충전재가 들어있는 혼합액과 coupling agent가 들어있는 혼합액을 섞고 4시간 동안 교반하였다. 혼합액을 여과하여 silica를 정제하고 80℃의 대류오븐 및 진공오븐에서 24시간 건조시켰다.

3) SrF₂계 충전재의 제조

김 등⁴¹⁾이 제조하여 시험한 SiO₂(Junsei Chem. Co. Ltd., 99%, Tokyo, Japan) 40wt%와 SrF₂(Aldrich Chem. Co. Inc., 99.9%, Wisconsin, U.S.A.) 60wt%를 사용하여 SrF₂계 충전재를 제조하였다. 불화물계열은 1,000℃ 이상에서 산화하므로 이를 방지하기 위하여 유리 용융시 NH₄F·HF를 첨가하여 1,300~1,350℃에서 2시간 유지 후 급냉시켜 유리를 제조하였다. 제조된 유리를 알루미늄 유발에서 분쇄한 후 체가름을

하여 분말(≤400mesh)화 하였다.

4) 시험용 불소방출 복합레진의 제조

SrF₂계 충전재 함량이 총 복합레진에 대하여 각각 8wt%, 16wt%, 24wt%가 되도록 하였으며 유입된 공기를 제거한 단량체 기질과 충전재 혼합물을 균일하게 혼합한 후, 60°C이하의 온도의 진공오븐에서 기포를 제거하여 시험용 불소방출 복합레진으로 사용하였으며, 대조군으로는 Heliomolar(Vivadent, Lichtenstein), Veridonfil (Vericom, Korea), Z100(3M, U.S.A.), Aelitefil(Bisco, U.S.A.) 등을 사용하였다(Table 1).

2. 연구방법

시험군인 VF8, VF16, VF24와 대조군인 HE, VE, ZH, AE에 대하여 3점 굽힘강도, 표면경도, 마모도, 물흡수도와 용해도 및 세포독성을 시험하였고, 시험군인 VF8, VF16, VF24와 대조군 중 HE에 대해 불소방출량을 시험하였다.

1) 중합깊이

유리판 위에 폴리에틸렌 필름을 놓고 그 위에 지름 4mm, 깊이 10mm인 주형을 올려 놓고 시험군과 대조군의 복합레진을 기포가 유입되지 않도록 주의하면서 약간 과충전한 후 폴리에틸렌 필름과 유리판을 연이어 덮고 압축하였다. 광조사기(Curing Light XL 3000, 3M Co., St. Paul., MN., U.S.A.)를 이용하여 10초와 30초간 각각 광조사하고 주형에서 재료를 탈착시켰다. 경화되지 않은 부분을 플라스틱 바로 긁어내고 경화된 부분의 깊이를 마이크로미터(Mitutoyo, Japan)로 측정하였다.

2) 3점 굽힘강도(3-point bending strength) 측정

길이 25mm, 폭 2.5mm, 두께 2.0mm의 주형에 각 시험재료를 기포가 생기지 않게 조금씩 충전한 후, 상하면을 4부분으로 나누어 각 부분에 10초씩 총 80초간 광중합하고 600번 사

포로 연마한 후 37°C, 100% 상대습도에 보관하였다. 24시간 후 각 부위를 Digimatic caliper을 이용하여 폭경 및 두께를 3회씩 측정하고 그 평균값을 산출하였다. 각 재료당 10개의 시편을 만능시험기(Instron 6022, Instron Co., Unna, U.K.)에서 0.75mm/min의 cross head speed로, 3점에 압축력을 가하여 파절될 때까지의 최대하중을 얻은 후 아래 식을 이용하여 3점 굽힘강도(3-point bending strength, FS)를 구하였다(Fig. 2). 이때의 두 지지점사이의 거리는 20mm이었다.

$$FS(MPa) = \frac{3Pl}{2bh^2}$$

P : 최대 하중(N)
 l : 두 지지점사이의 거리(mm), 20mm
 b : 폭(mm), h : 두께(mm)

3) 표면경도(surface hardness) 측정

두께 3mm, 직경 6mm의 원판 주형에 기포가 생기지 않게 복합레진을 충전한 후, 상하 10초씩 20초간 광중합하여 각 재료 당 10개의 시편을 제작하였다. 미세경도기(DMH2, Matsuzawa Seiki Co., Tokyo, Japan)를 이용하여 100g의 하중을 5초간 가하여 비커스 경도(Vickers Hardness Number, V.H.N.)를 구하였다.

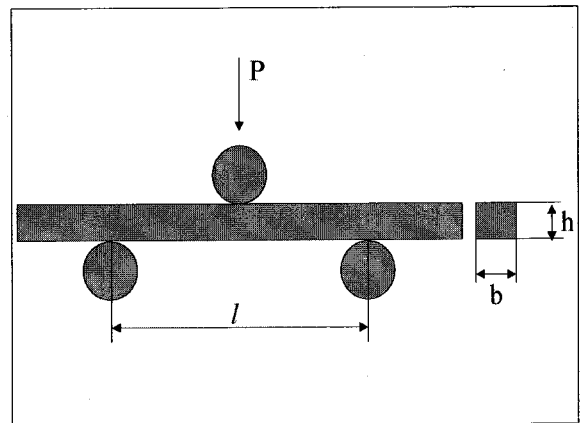


Fig. 1. Schematic drawing of 3-point bending test.

Table 1. Materials used in this study

Group	Code	Brand	Manufacturer	Filler type	Filler by wt%	Content of Fluoride-release glass
Test	VF8	-	-	Hybrid	80	SrF ₂ .SiO ₂ 8wt%
	VF16	-	-	Hybrid	80	SrF ₂ .SiO ₂ 16wt%
	VF24	-	-	Hybrid	80	SrF ₂ .SiO ₂ 24wt%
Control	HE	Heliomolar	Vivadent	Microfilled	76	YbF ₃ 5vol%
	VE	Veridonfil	Vericom	Hybrid	80	-
	ZH	Z100	3M	Hybrid	85	-
	AE	Aelitefil	Bisco	Hybrid	80	-

4) 마모도(two-body abrasion) 측정

마모도시험은 표면경도시험에서 사용한 시편을 이용하였다. 각 재료 당 10개의 시편에 대하여 무게를 0.1 μ g까지 측정하고 마모시험기(K236, 東京機研, Tokyo, Japan)를 이용하여 250g의 하중 하에서 400번 사포 위를 10m 왕복 주행시킨 후 다시 무게를 측정하였다. 이때 매 시험마다 사포를 새 것으로 교환하였으며 시험 전 무게에 대한 시험 후의 무게 감소량을 마모도로 평가하였다.

5. 물흡수도(water sorption) 및 용해도(solubility) 측정

두께 0.5mm, 직경 15mm의 주형에 복합레진을 충전하고 한면에 4부분을, 각각 10초씩 총 80초간 광중합하여 각 재료 당 5개의 시편을 만들었다. 시편을 주형에서 제거하고 130 $^{\circ}$ C에서 5시간 건조한 Silica gel을 갖는 건조자에 넣어 37 $^{\circ}$ C에서 24시간 보관하였다. 이후 23 $^{\circ}$ C의 건조자로 옮기고 1시간 보관하였다가 시편의 무게를 측정하였다(m_1). 이때 m_1 은 시간의 간격을 두고 여러 번 측정하여 무게감량이 0.2mg이하로 일정하였을 때의 무게로 하였다.

위의 시편을 37 $^{\circ}$ C의 증류수에 7일간 보관 후 cellulose tissue로 표면의 수분을 제거하고 무게를 측정하여(m_2), (1)의 식으로부터 7일 후 물흡수율을 산출하였다. 다시 실온의 건조자에서 24시간 건조시킨 후 무게를 측정하고, 매 24시간마다 반복 측정하여 무게 변화가 0.2mg을 초과하지 않을 때를 최종 건조 후 무게(m_3)로 하고, (2)의 식으로부터 용해도를 산출하였다.

$$(1) \text{ Water Sorption } \left(\frac{\mu\text{g}}{\text{mm}^2} \right) = \frac{m_2 - m_1}{S}$$

$$(2) \text{ Solubility } \left(\frac{\mu\text{g}}{\text{mm}^2} \right) = \frac{m_1 - m_3}{S}$$

S : 표면적(mm^2)

m_1 : The conditioned mass of the specimen before immersion in water

m_2 : The mass of the specimen after immersion in water

m_3 : The reconditioned mass of the specimen

6. 불소방출량 측정

시험군과 HE에 대하여 각 재료 당 4개의 시편을 제작하였고 시편의 크기는 지름이 10mm, 두께가 2mm이었다. 모든 시편은 한 면 당 10초씩 상하 4번, 총 80초간 광조사하여 제조하였고 600번 사포를 이용하여 표면을 고르게 한 후 압축공기로 세척하여 사용하였다.

50ml 폴리에틸렌 용기에 2차 증류수 5ml을 담고 각 재료 당 4개의 시편을 침적시켜서 37 $^{\circ}$ C에서 일정기간 보관하여 불소방

출을 유도한 후 5ml의 2차 증류수로 세척하고, 세척된 시편은 다시 2차 증류수 5ml가 담겨져 있는 폴리에틸렌 용기에 침적시켜 37 $^{\circ}$ C에서 일정기간 보관하였다. 이때 세척한 증류수는 불소방출을 유도한 용기에 포함시켜 불소방출을 유도시킨 증류수는 총 10ml가 되게 하였다. 불소방출이 유도된 여액은 Buffer (TISAB III, Orion Research, U.S.A.) 1ml을 첨가하고 냉장 보관하였다. 위의 방법으로 1일, 4일, 18일, 25일, 32일, 48일, 62일째에 불소방출을 유도한 여액의 불소방출량(ppm)을 측정 후 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 으로 환산하였다.

불소방출량 측정은 산도측정기(Orion 970 pH meter, U.S.A.)를 이용하여 실시하였다. 검정은 Fluoride 표준용액(Orion Research, U.S.A.)의 0.1ppm, 10ppm, 50ppm, 100ppm으로 하였고, 각각의 표준용액은 불소방출시료에서와 마찬가지로 10ml당 1ml의 Buffer을 첨가하여 사용하였다.

7. 세포독성 시험

지름 10mm, 두께 2mm의 시편을 제작하여 표면을 연마 후 한천배지에 접촉시키기 전에 ethylene oxide 가스로 멸균하였다. 양성대조군은 97%, 1-Methyl-3-nitro-1-nitrosoguanidine 0.4 μ g를 적신 여과지를, 음성대조군은 주사용 증류수를 적신 여과지를 사용하였으며 이들 역시 접촉면적이 시편과 동일하도록 제작하여 이용하였다.

L-929세포의 부유액($3 \times 10^5/\text{ml}$)을 만든 후 90mm의 petri-dish에 세포부유액 10ml을 첨가한 후 24시간 배양하였다. 배양액을 제거하고, 45~50 $^{\circ}$ C의 Eagle's agar medium 10ml을 각각의 petri-dish에 첨가하였다. 실온에서 30분간 방치하여 고체화 된 Eagle's agar medium의 중앙부위에 neutral red vital stain 용액 10ml을 천천히 첨가하여 전면에 염색액이 퍼지도록 한 후 30분간 방치하였다. 염색액을 제거하고 가능한 한 빨리 시편을 한천에 밀착시키도록 얹은 후 37 $^{\circ}$ C, 5% CO₂ 농도의 배양기 안에서 24시간 배양하였다.

Petri-dish를 백지 위에 놓고 육안과 자로 탈색된 부위의 크기를 관찰하여 탈색지수를 구하였고, 위상차현미경(Olympus C2, Tokyo, Japan)을 이용하여 탈색된 부위 내에서 세포가 사멸된 비율을 측정하여 사멸지수를 구하였다. 탈색 지수(Zone index)와 사멸지수(Lysis index)에 따른 반응지수(Response index)에 의하여 세포독성에 대한 평가를 하였다(Response index = Zone index/Lysis index). 탈색지수, 사멸지수 및 반응지수의 기준과 이에 준한 세포독성도의 기준은 Table 2와 같다.

8. 통계처리

시험군과 대조군 간의 굽힘강도, 마모도, 표면경도, 물흡수 및 용해도, 그리고 불소방출량 시험의 유의차를 알아보기 위해서 비모수적 통계방법중 1요인분산분석 방법인 Kruskal-Wallis one way ANOVA test(Chi-Square Approximation)

Table 2. Zone index, lysis index and response index criteria

	Index	Description
Zone index	0	No detectable zone around or under sample
	1	Zone limited to area under sample
	2	Zone not greater than 0.5cm in extension from sample
	3	Zone not greater than 1cm in extension from sample
	4	Zone greater than 1cm in extension from sample, but not involving entire plate
	5	Zone involving entire plate
Lysis index	0	No observable lysis
	1	Up to 20% of zone lysed
	2	20~40% of zone lysed
	3	40~60% of zone lysed
	4	60~80% of zone lysed
	5	Over 80% lysed within zone
Response Index	None	0/0
	Mild	1/1~1/5, 2/1
	Moderate	2/2~2/5, 3/1~3/5, 4/1~4/3
	Severe	4/4, 4/5, 5/1~5/5

를 사용하여 95%의 신뢰구간에서 유의차를 검정하였으며, 유의확률값(Prob)이 0.05미만인 경우에 유의차가 있다고 판단하였다.

Ⅲ. 연구성적

1. 중합깊이

시험군의 중합깊이는 대조군보다 컸다. 시험군은 10초의 광조사시 4mm 이상, 30초의 광조사시 5mm 이상의 중합깊이를 나타내었다. 대조군은 10초의 광조사시 4mm 이하, 30초의 광조사시 5mm 이하의 중합깊이를 나타내었다(Table 3).

2. 3점 굽힘강도

대조군인 ZH가 가장 높았고 시험군은 70~80MPa의 굽힘강도를 보여 기존의 복합레진인 VE 및 AE와 유사한 굽힘강도

Table 3. Polymerization depth(mm) of materials tested

	10sec	30sec
VF8	4.1	5.6
VF16	4.6	6.2
VF24	4.3	5.8
HE	2.8	3.5
VE	3.6	4.8
ZH	3.7	5.0
AE	3.2	4.0

를 나타내었으며, 불소방출 복합레진 제품인 HE에 비하여 우수한 굽힘강도를 나타내었다($p < 0.05$)(Table 4, 7, Fig. 2). 3점 굽힘강도에서 시험군 간의 유의차는 없었다($p < 0.05$)(Table 7).

3. 표면경도

표면경도는 대조군인 ZH가 가장 높았고, VF16, VF24의 표면경도는 VE와 유사하였으며, VF8은 AE와 유사한 표면경도를 나타내었고, 시험군 모두 HE에 비해 우수한 표면경도를 나타내었다($p < 0.05$)(Table 4, 7, Fig. 2). 시험군 중에서 VF8이 VF16, VF24에 비해 표면경도가 낮았다($p < 0.05$)(Table 4, 7).

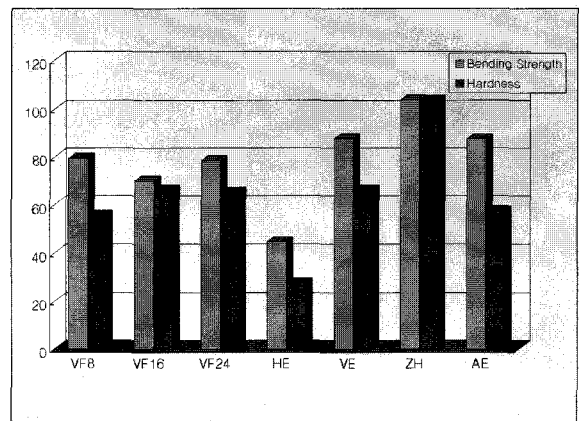


Fig. 2. Mean 3-Point bending strength(MPa) and hardness(V.H.N) of materials tested.

4. 마모도

VF16, VF24가 낮은 마모도를 나타냈으며 HE가 가장 높은 마모도를 나타내었다(Table 4, Fig. 3). 시험군 간에서 VF8은 VF16, VF24와 유의차를 보였다($p<0.05$)(Table 7). 시험군은 대조군 중 HE, ZH에 비해 낮은 마모도를 나타내었다($p<0.05$)(Table 4, 7).

5. 물흡수도 및 용해도

시험군의 물흡수도는 대조군중 HE, VE, AE와 유사하였으며, ZH보다는 낮았다($p<0.05$)(Table 4, 7). 시험군간에서 유의차는 없었다($p<0.05$)(Table 7).

용해도의 경우 시험군은 대조군 중 HE와 유의차가 없었으며, VE, ZH, AE보다는 높은 용해도를 나타내었다($p<0.05$)(Table 4, 7, Fig. 4). 시험군간에서 유의차는 없었다($p<0.05$)(Table 7).

Table 4. The mechanical properties of materials tested

	VF8	VF16	VF24	HE	VE	ZH	AE
3-point bending strength(MPa)	79.3±6.9	70.0±6.3	78.5±3.9	45.6±3.1	87.5±0.3	103.8±8.5	85.9±3.9
Hardness (VHN)	55.5±1.7	66.0±2.9	65.2±4.2	22.8±0.4	66.1±2.7	103.6±1.7	57.5±1.7
Abrasion (%)	3.93±0.38	2.83±0.09	2.76±0.07	5.75±0.23	2.99±0.24	4.2±0.14	3.91±0.1
Water Sorption ($\mu\text{g}/\text{mm}^2$)	5.90±0.38	3.95±0.11	3.74±0.06	5.08±0.2	3.91±0.18	7.15±0.16	4.96±0.08
Solubility ($\mu\text{g}/\text{mm}^2$)	1.98±0.04	1.29±0.02	1.75±0.1	1.29±0.02	1.21±0.23	1.31±0.01	1.33±0.17

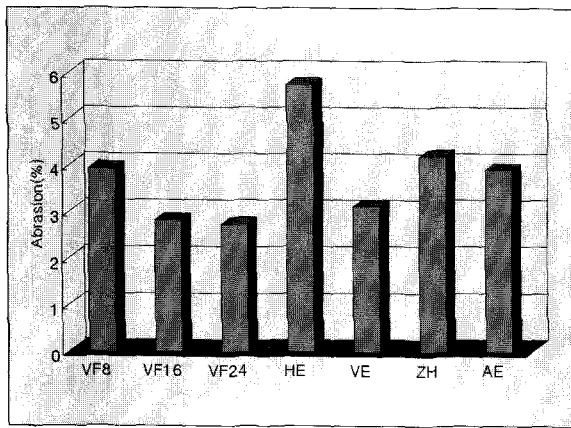


Fig. 3. Mean abrasion(%) of materials tested.

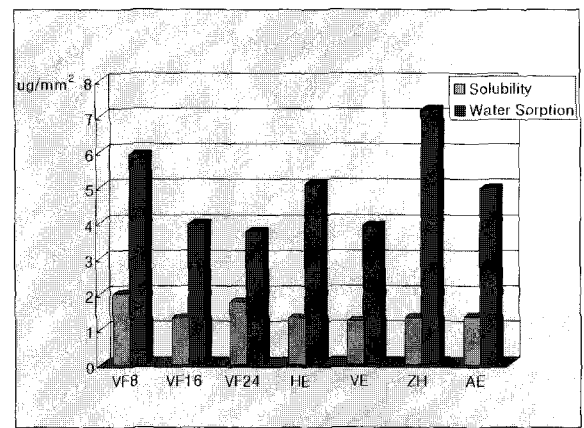


Fig. 4. Mean water sorption and solubility of materials tested.

Table 5. Total cumulative amounts of fluoride($\mu\text{g}/\text{cm}^2$) released during various time periods. Mean values

Code	day 1	day 4	day 18	day 25	day 32	day 48	day 62
VF8	67	137	242	311	353	393	413
VF16	118	222	394	501	584	659	698
VF24	187	324	570	704	823	955	1037
HE	11	17	26	32	36	42	45

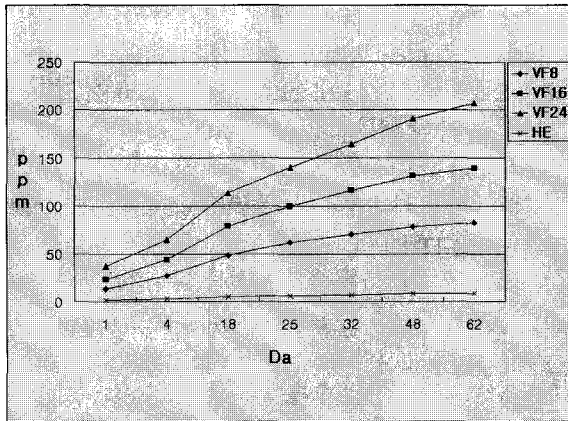


Fig. 5. Total cumulative amount of fluoride(ppm) released as a function of time. Mean values.

Table 6. Various indices of the materials by agar overlay test

Code	Zone Index	Lysis Index	Response Index
VF8	1	1	1/1
VF16	2	1	2/1
VF24	2	1	2/1
HE	1	2	1/2
VE	0	1	0/1
ZH	1	1	1/1
AE	0	1	0/1

Table 7. Statistical evaluation of materials tested

	VF8	VF16	VF24	HE	VE	ZH
VF16	1=x					
	2=o					
	3=o					
	4=x					
	5=x					
VF24	1=x	1=x				
	2=o	2=x				
	3=o	3=x				
	4=x	4=x				
	5=x	5=x				
HE	1=o	1=o	1=o			
	2=o	2=o	2=o			
	3=o	3=o	3=o			
	4=x	4=x	4=x			
	5=x	5=x	5=x			
VE	1=x	1=x	1=x	1=o		
	2=o	2=x	2=x	2=o		
	3=x	3=x	3=x	3=o		
	4=x	4=x	4=x	4=x		
	5=o	5=x	5=o	5=o		
ZH	1=o	1=o	1=o	1=o	1=x	
	2=o	2=o	2=o	2=o	2=o	
	3=o	3=o	3=o	3=o	3=x	
	4=x	4=o	4=o	4=x	4=o	
	5=o	5=o	5=o	5=o	5=o	
AE	1=x	1=o	1=x	1=o	1=x	1=x
	2=x	2=o	2=o	2=o	2=o	2=o
	3=x	3=o	3=x	3=o	3=x	3=x
	4=x	4=x	4=x	4=x	4=x	4=o
	5=o	5=o	5=o	5=o	5=o	5=o

1=Variable Difference of 3-point Bending Strength Test

2=Variable Difference of Hardness Test

3=Variable Difference of Abrasion Test

4=Variable Difference of Water Sorption Test

5=Variable Difference of Solubility Test

All tested materials have a variable difference in the Fluoride-Release Test.

If there is the variable difference, the mark is O

If there is not the variable difference, the mark is X

6. 불소방출량

VF8, VF16, VF24와 HE에 대하여 62일 동안 불소방출량을 측정 한 결과, 실험기간 동안 모든 재료들은 불소를 방출하였으며, 처음 24시간 후 불소방출량은 감소하였다.

전기기간에 걸쳐 불소방출량은 VF24에서 가장 많았으며, 그 다음 VF16, VF8, HE의 순서였다. 대조군인 HE에 비해 VF24는 처음 24시간 동안에는 약 17배 많은 불소를 방출하였으며, 그 후 전 실험기간동안 약 22배에서 23배 많은 불소를 방출하였다. VF16은 HE에 비해 평균 15배 많은 불소를 방출하였으며, VF8은 HE에 비해 평균 9배 많은 불소를 방출하였다.

시험군의 불소방출량은 함유된 SrF₂ 계 충전재의 양에 따르는 것으로 나타났으며(Table 5, Fig. 5), 각 군에서 모두 유의차를 보였다(p<0.05) (Table 7).

7. 세포독성

시험군과 대조군에서 모두 약한 정도의 세포독성을 나타내었다(Table 6). 불소방출 복합레진인 시험군과 HE에서 다른 복합레진보다 높은 반응지수를 나타냈는데, 이는 불소방출로 인한 결과로 판단된다. 불소방출 복합레진 중에서는 시험군인 VF8이 가장 낮은 반응지수를 보였다.

8. 통계적 평가

전 시험항목에서 유의확률값(Prob)이 0.05보다 작아 유의차가 있음을 나타내었고 각 군간의 유의차는 Table 7과 같다.

IV. 총괄 및 고찰

아말감의 독성에 대한 우려와 심미적 관심의 증가 때문에 최근 복합레진이 치과재료 중 차지하는 비중이 점점 증가하고 있다. 그러나 복합레진의 중합수축으로 인해 치질과 수복재 사이의 접착 부위에 응력이 가해지고 파괴되어 변연 부위에 공극이 생길 수 있다^{42,43}. 치질과 수복재 사이의 공극은 수분과 세균의 통로가 되고, 이런 변연누출에 의해 치질이 탈석회화되어 발생하는 이차우식증이 복합레진을 재수복하는 주된 원인으로 알려져 있으며^{44,45}, 변연누출 부위에 불소가 존재할 경우 이차우식증이 감소했다는 사실이 보고된 바 있다^{8,46}. 치질에 불소가 흡수되는 기전은 확산에 의하며, 수분의 교환이 적은 이런 공극에서는 불소농도가 높아질 수 있어 확산이 일어날 가능성이 높다.

우식증 예방에 효과적인 불소농도에 관해 900~6000ppm에서 세균의 종류에 따라 살균효과가 있고 0.019ppm~0.14ppm에서 세균의 성장이 억제되는 것으로 보고된 바 있으며⁴⁷ 0.01ppm의 저농도 불소가 계속 존재하면 우식병소의 재석회화와 우식증의 진행정지를 증진시킨다는 연구도 있다³⁶. Margolis 등²⁾에 따르면 불소농도가 0.024ppm일 때 법랑질의

탈석회화가 감소되었으며, 1ppm일 때 법랑질의 탈석회화가 방해되었다고 하였으므로 수복물이 구강 내에 유지될 동안 계속해서 1ppm의 불소를 방출하는 것이 바람직 할 수 있다. ten Cate와 Arends는 고농도의 불소를 도포할 경우 법랑질의 표층만이 재석회화되고 표층의 세공을 막아 무기 이온의 확산을 방해하여 보다 깊은 법랑질 내부의 재석회화를 억제하므로 저농도로 자주 도포하는 것이 유리하다고 하였다⁴⁸. 그러나 우식저항성을 갖는 최소한의 불소방출량은 아직 규명되지 못한 상태이며, 탈석회화를 방지하거나 재석회화를 촉진하는데 필요한 불소방출량 역시 정립되지 않았다.

불소방출 복합레진에서의 불소방출량은 글래스 아이오노머 시멘트에 비해 매우 적은 양으로 보고되었으며^{23,31,32,34,35}, 거의 불소를 방출하지 못하였다는 연구 결과도 보고된 바 있다^{33,36}. 불소방출 복합레진의 항우식 효과에 관한 연구에서 Helimolar 인접 상아질의 인공우식증 깊이가 감소하고 광물질 소실이 적었으며^{29,37,49}, 불소방출 복합레진의 재광물화 효과에 관한 Donly와 Gomez⁴⁹의 연구에서 2주 및 3달 뒤 Helimolar 주변의 인공우식병소의 감소가 나타났다. 200 μ m의 인공 공극을 형성 후 항우식 효과를 연구한 Dijkman과 Arends²²의 실험실 연구에서 불소방출 복합레진은 항우식 효과를 나타내었으며 병소 깊이는 27~45%가 감소되었고, 무기질 소실은 25~56%가 감소되었음이 보고되었다. 그러나 글래스 아이오노머 시멘트와 불소방출 복합레진의 항우식효과를 비교한 많은 연구들에서 글래스 아이오노머 시멘트는 명확한 우식 억제 부위를 나타내었으나, 불소방출 복합레진에서는 인접 와동벽의 우식병소에 대한 우식 억제 부위가 관찰되지 않았다는 상반된 결과가 보고되었다^{11,12,38,40}. 이상의 연구결과를 종합하여 보면 불소방출 복합레진의 불소방출량과 항우식 효과는 글래스 아이오노머 시멘트보다 적은 것으로 추정할 수 있다⁵⁰. 따라서 본 실험에서는 복합레진의 우수한 물리적 성질을 유지하면서 보다 많은 양의 불소를 방출할 수 있도록 기존의 제품보다 불소의 함량을 증가시켜 시험군의 복합레진을 제조하였다. 불소방출 복합레진을 제조하기 위해 많은 연구를 통해 여러 방법이 시도되어 왔는데¹⁷⁻²⁵ 그중 불소를 방출하는 충전재(filler)를 첨가시키는 방법이 불소가 방출되어도 적절한 물리적, 기계적 성질이 유지되는 것으로 보고되어 왔다^{20,22}. 본 연구에서는 김 등⁴¹이 SiO₂ 40wt%와 SrF₂ 60wt%를 사용하여 제조하고 시험한 불소유리(glass) 충전재를 함량을 달리 첨가하여 3종의 불소방출 복합레진을 제조하였다.

저작 등 재료에 가해지는 외력에 내구성을 갖기 위해서는 굽힘강도, 경도, 마모도 등의 기계적, 물리적 성질이 우수해야 한다. 본 실험에서 시험군 VF8, VF16과 VF24는 대조군 중 VE, AE와 유사한 3점 굽힘강도를 나타내었으며 불소방출 복합레진인 HE보다는 2배에 이르는 높은 3점 굽힘강도를 갖는 것으로 나타났다. 시험군의 표면경도는 VE, AE와 유사하였고, HE보다는 우수하였다.

시험군은 HE에 비해 낮은 마모도를 나타내었으며, 시험군과 VE의 마모도 간에 유의차가 없었으므로 SrF₂계 충전재를 함

유함에 따른 마모도의 변화는 없는 것으로 판단되었다.

3점 굽힘강도, 표면경도와 마모도의 시험결과로 볼 때, 본 시험에서 이용한 SrF₂계 충전재는 복합레진에 첨가시 물리적 성질의 약화를 야기하지 않는 것으로 판단되었고, 기존의 상용화되어 있는 불소방출 복합레진인 HE보다 우수한 물리적 성질을 나타내었다. 이는 HE가 구치부 수복용으로 개발되었으나, 조성상 미세입자형 복합레진이기 때문에 여러 물리적 성질이 hybrid형 복합레진인 시험군에 비해 떨어지는 것으로 사료된다.

치과에서 사용하는 수복재료는 항상 타액이 있는 구강환경에서 기능해야 하므로 수분과의 접촉은 필연적이며, 따라서 재료의 용해도나 물흡수도와 같은 특성은 임상적으로 중요한 의미를 갖는다. 물이 흡수된 부분은 재료를 약화시킬 수 있고 재료로부터 유리된 가용성 성분은 조직반응을 유발할 수 있으며, 물 흡수는 재료 자체의 용해를 야기하여 수복물을 분해시킬 수 있기 때문에 기계적 물성의 저하와도 밀접한 관계가 있다⁵¹⁾. 물 흡수도는 접촉각이 클수록 감소하고 조성에 있어서 수산화기가 중요한 역할을 하므로 조성상 수산화기가 없는 레진에서 접촉각이 크고 물 흡수성이 작다. Fig. 4와 Table 7에서 볼 때 시험군인 VF8, VF16, VF24의 용해도는 대조군 중 HE와 유사하였으며, ZH, AE보다는 큰 용해도를 나타내었다. 즉, 불소방출 복합레진에서 다른 복합레진보다 용해도가 큰 것으로 나타났으며, 이는 불소방출과 연관이 있는 것으로 판단된다. 시험군 중 VF8, VF24에서는 같은 레진 기질을 갖는 VE에 비해 용해도가 더 컸다. 시험군의 물흡수도는 ZH보다 작았으며, HE, VE, AE와 유사하였다. 복합레진의 기계적, 물리적 성질의 약화를 가져오는 물흡수도의 경우, 시험군은 같은 레진기질을 이용한 대조군인 VE와 유사한 물흡수도를 나타내었다.

이상의 실험결과를 종합하여 보면, 시험군은 불소방출 복합레진인 HE에 비해 3점 굽힘강도, 표면경도, 마모도 등의 성질이 우수하였으며, 물흡수도 및 용해도는 유사하였다. 시험군 중 VF16은 모든 물리적 성질이 VE와 유사하였고, VF24는 용해도가 VE보다 높았으며, 다른 물리적 성질은 VE와 유사하였다. VF8은 표면경도가 VE에 비해 더 낮았고, 용해도는 VE에 비해 더 높았다. 물리적 성질만을 고려한다면 SrF₂계 충전재를 16wt% 첨가시킨 VF16이 시험군 중 가장 우수한 것으로 나타났다.

SrF₂계 충전재를 함유한 시험군의 여러 물리적 성질이 기존의 복합레진 대조군과 유사하였으므로 불소를 방출하는 복합레진으로 유용하리라고 판단되었다.

글래스 아이오노머 시멘트의 불소방출에 관한 연구는 많으나 불소방출 복합레진에 관한 연구는 상대적으로 드물다. Heliomolar에 관한 연구가 가장 많이 이루어져왔으므로^{20,23,31,32,35,38)} 이를 대조군으로 선택하였다.

불소가 함유된 치과재료에서 불소가 방출되는 기전은 용해와 확산이며, 모든 종류의 재료에서 처음 24시간에 많은 양이 방출되며, 이후 급격히 감소하여 일정량을 유지하는 burst effect를 보인다^{21,23,32,34,52)}. 초기의 불소방출은 빠른 표면추출에 의한

것이고 후기에 일정하게 방출되는 불소는 부피전체의 확산에 의한 것이므로¹⁶⁾ 시편의 용적(dimension)이 불소방출량에 중요한 영향을 미친다. 불소방출량에 관하여 많은 연구가 있어 왔지만 직접 비교하는 것은 불가능하며 어떤 방법도 100% 정확하지 않기 때문에 어느 방법이 가장 좋은 방법인지는 논란의 대상이 되어 왔다. 용액내의 불소의 ppm은 상대적 양을 비교하는 수단으로만 받아들여지며, 단위 면적 당 불소방출량과 단위 부피 당 불소방출량을 측정하는 방법은 시편의 면적과 부피를 계산에 포함시켜야 한다.

본 연구에서 시험군과 대조군의 불소방출은 처음 24시간 동안 가장 많이 일어났고, 그 이후 감소하는 비슷한 양상을 보였으나, 다른 연구들에서 나타난 글래스 아이오노머 시멘트에서의 불소방출처럼^{32,38)} 급격한 burst effect는 없었다. 물이 불소방출레진을 통과해야 불소가 방출되기 때문에 불소방출량은 재료의 투과성과도 연관이 있는데, 복합레진은 물이 매우 서서히 확산되므로 불소방출량이 글래스 아이오노머 시멘트에 비해 적은 것이라고 설명할 수 있다. 불소방출량은 전 기간에 걸쳐 VF24에서 가장 많았으며, 그다음 VF16, VF8, HE의 순서였다. 대조군인 HE에 비해 VF24는 처음 24시간동안에는 약 17배 많은 불소를 방출하였으며, 그 후 전 실험기간동안 약 22배에서 23배 많은 불소를 방출하였다. VF16은 HE에 비해 평균 15배 많은 불소를 방출하였으며, VF8은 HE에 비해 평균 9배 많은 불소를 방출하였다(Fig. 5).

시험군의 불소방출량을 비교시 전 기간에 걸쳐 VF16은 VF8보다 약 2배의 불소를, VF24는 VF8보다 약 3배의 불소를 방출하였으므로 시험군의 불소방출량은 함유된 SrF₂계 충전재의 양과 비례한 것으로 나타났다. 그러나 불소방출 복합레진의 불소방출량에 관해 Arends 등²⁸⁾은 불소 충전재의 함량보다 불소 충전재의 종류, 복합레진의 종류, 충전재의 입자 크기, silane 처리, porosity 등이 더 중요하다고 하였다. 시험군의 불소방출량이 HE에 비하여 월등히 많았으므로, HE의 불소방출성분인 ytterbium trifluoride보다 본 연구에서 이용한 SrF₂계의 충전재가 더 적절한 것이라고 판단할 수 있다.

세포독성 시험은 재료의 전반적인 생물학적 친화성을 평가하기에는 한계가 있지만 재현성이 높고 비교적 간단하며 검사과정을 표준화하기 쉽고 단기간 동안 저렴한 비용으로 정량적인 결과를 얻을 수 있어 치과재료의 생물학적 평가에서 표준적격 심사(standard screening procedure)로 요구되고 있으며 특히 새로 개발된 재료에 대한 생물학적 친화성의 평가에는 필수라고 할 수 있다⁵³⁾. 치과재료의 세포독성 시험에는 여러 방법이 있는데 그 중 한천배지법은 막투과도의 변화에 근거한 방법으로 재료로부터 직접 방출되는 성분의 급성 세포독성을 발견하기 위한 방법이다. 세포배양으로 얻은 결과는 실제 사용에서 얻은 결과를 완전히 재현할 수는 없으나, Hensten-Pettersen과 Helgeland는 여러 세포독성 측정방법 중 한천배지법이 독성을 비교적 정확히 평가할 수 있는 방법이라고 하였다⁵⁴⁾. 재료의 생물학적 친화성은 물리적 성질에 못지않게 중요한 성질로

서 장기적 임상적 유용성에 중요한 기여를 한다. 따라서 새로운 재료의 생체적합성 시험은 필수적이고 그중 초기시험은 더욱 필요하다고 할 수 있다. 세포독성시험의 결과에는 여러 요소가 영향을 미치며 세포의 유형, 재료의 물리적 성상, 세포와 재료가 접촉하는 방법 및 세포손상을 측정하는 방법에 따라 서로 다르게 나타나고, 재료를 추출하는 방법(시간, 온도, 유형), 시편의 표면적과 추출배지의 부피비, 세포-재료 접촉유형에 따라 서로 오류를 유발할 수 있어서 여러 연구자들의 연구 결과를 상호 비교하기는 어렵다^{54,55}.

본 연구에서 시험군과 대조군은 모두 약한 정도의 세포독성을 보였다(Table 6). VF16, VF24, HE에서 다른 복합레진에 비해 보다 높은 반응지수를 보였지만 세포독성은 다른 복합레진과 마찬가지로 약한 정도로 평가되었다. 시험군과 대조군에서 불소방출 복합레진이 기타 다른 복합레진보다 높은 반응지수를 보였는데 이는 불소방출로 인한 결과로 판단된다. 그러나 발표된 논문에서 ZH의 반응지수가 2/2로 나타나 중정도의 세포 독성을 나타낸 경우도 있다⁵⁶.

이상의 연구에서 SrF₂계 충전재를 함유한 복합레진의 물리적 성질 및 세포독성은 기존의 상용화된 수복용 복합레진과 유사하였으며, 불소방출량은 기존의 제품에 비해 9~23배정도 많은 것으로 나타나 항우식효과가 높을 것으로 예상되었다.

복합레진으로 수복시 치질과의 충분한 접촉강도를 얻기 위해 상아질, 법랑질 접착제의 사용이 필수적인데, 이런 접착제가 불소방출 복합레진과 치질사이의 장벽이 될 수 있다. 최근에 불소를 방출하는 접착제의 개발이 많이 이루어지고 있는데 이런 불소방출 상아질 접착제에서 초기에 비교적 많은 양의 불소가 방출되어 변연누출 부위의 불소농도가 높아질 수 있을 뿐만 아니라 혼합층(hybrid layer)으로 불소가 흡수되었다고 보고된바 있다^{57,58}. 또한 새로운 상아질 접착제의 개발로 치질에 대한 접착강도가 개선되었으므로, 불소방출 복합레진과 함께 사용시 이차우식증의 형성을 상당히 저지시킬 수 있을 것으로 예상할 수 있다. 최근의 경향은 복합레진을 독립된 재료가 아닌 법랑질, 상아질 접착제를 포함한 복합레진 system의 일부로 고려하므로 적절한 임상적 효과를 얻기 위하여 본 SrF₂계 충전재를 함유한 복합레진과 함께 사용할 법랑질, 상아질 접착제에 관한 연구가 계속되어야 하며, 또한 불소가 방출된 후의 복합레진의 물리적 성질 변화에 대한 연구가 계속되어야 할 것이다.

V. 결 론

변연누출 등에 의한 이차우식증을 예방할 수 있는 충분한 농도의 불소를 방출시키기 위해 SrF₂계 충전재를 함량을 달리 첨가하여 새로운 수복용 불소방출 복합레진 시험군(VF8, VF16, VF24)을 제조하고 이에 대한 물리적 성질과 세포독성 및 불소방출량을 기존의 복합레진 제품인 Heliomolar(HE), Verdonfil(VE), Z100(ZH) 및 Aelitefil(AE)의 대조군과 비교 시험하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

1. 시험군의 3점 굽힘강도는 ZH에 비해서는 낮았으나, 다른 대조군인 AE, VE와 비슷하였고, HE보다는 우수하였으며 시험군 간의 유의차는 없었다(p<0.05).
2. 시험군의 표면경도는 ZH보다 낮았고, AE, VE와 유사하였으며, 불소 방출 대조군인 HE보다는 우수하였다(p<0.05). 시험군 중에서는 VF16, VF24가 VF8에 비해 표면경도가 높았다(p<0.05).
3. 시험군의 마모도는 대조군인 HE, ZH보다 우수한 결과를 얻었으며 시험군중에서는 VF16, VF24가 VF8에 비해 낮은 마모도를 나타내었다(p<0.05).
4. 시험군의 물흡수도는 대조군인 HE, VE, AE와 유사하였으며, ZH보다는 낮았다(p<0.05). 시험군의 용해도는 대조군인 HE와 유의차가 없었으며, ZH, AE보다 높은 용해도를 나타내었다(p<0.05).
5. 시험군은 대조군인 HE보다 9~23배 많은 양의 불소를 방출하였으며, 시험군의 불소방출량은 SrF₂계 충전재의 함유량과 비례하였다.
6. 세포독성시험에서 시험군과 대조군은 모두 약한 정도의 독성을 나타내었다.

이상의 실험결과로 SrF₂계 충전재를 함유한 복합레진의 물리적 성질은 우수한 것으로 나타났으며, 불소방출량은 기존의 불소방출 복합레진보다 현저히 높아 이차우식증에 대한 항우식효과도 높을 것으로 사료되었다.

참고문헌

1. Arends J, Christoffersen J : The nature of early caries lesions in enamel. J Dent Res 65:2-11, 1986.
2. Margolis HC, Moreno EC, Murphy BJ : Effect of low levels of fluoride in solution on enamel demineralization in vitro. J Dent Res 65:23-29, 1986.
3. Stookey GK, Schemehorn BR, Cheetham BL, et al. : In situ Fluoride uptake from fluoride dentifrices by carious enamel. J Dent Res 64:900-903, 1985.
4. ten Cate JM, Duijsters PPE : Influence of fluoride in solution on tooth demineralization. Caries Res 17:513-519, 1983.
5. Volker JF, Belkakis E, Melillo S : Some observations on the relationship between plastic filling materials and dental caries. Tufts Dent Outlook 18:4-8, 1944.
6. Forsten L, Paunio IK : Fluoride release by silicate cements and composite resins. Scand J Dent Res 80:515-519, 1972.
7. Forsten L : Fluoride release from a fluoride-containing amalgam and two luting cements. Scand J Dent Res 84:348-350, 1976.

8. Grieve AR : The occurrence of secondary caries-like lesions in vitro. The effect of a fluoride cavity liner and cavity varnish. *Br J Dent* 134:530-536, 1973.
9. Heintze U, Mornstad H : Artificial caries-like lesions around conventional, fluoride-containing and dispersed amalgams. *Caries Res* 14:414-421, 1980.
10. Jerman AC : Silver amalgam restorative material with stannous fluoride. *J Am Dent Assoc* 80:787-791, 1970.
11. Dionysopoulos P, Kotsanos N, Papadogiannis Y, Konstantinidis A : Artificial caries formation around fluoride-releasing restorations in roots. *J Oral Rehab* 25:814-820, 1998.
12. Pereira PNR, Inokoshi S, Tagami J : *In vitro* secondary caries inhibition around fluoride releasing materials. *J Dent* 26:505-510, 1998.
13. Lloyd CH, Mitchell L : The fracture toughness of tooth coloured restorative materials. *J Oral Rehabil* 11:257-272, 1984.
14. Maldonado A, Swartz ML, Phillips RW : An *In vitro* study of certain properties of a glass ionomer cement. *J Am Dent Assoc* 96:785-791, 1978.
15. Fruits TJ, Duncanson Jr, Miller RC : Bond strengths of fluoride-releasing restorative materials. *Am J Dent* 9:219-222, 1996.
16. Chadwick SM, Gordon PH : An investigation into the fluoride release of a variety of orthodontic bonding agents. *Br J Ortho* 22:29-33, 1995.
17. Rawls HR, Zimmerman BF : Fluoride-exchanging resins for caries protection. *Caries Res* 17: 32-43, 1983.
18. Tanaka M, Ono H, Kadoma Y, Ima Y : Incorporation into human enamel of fluoride slowly released from a sealant in vivo. *J Dent Res* 66:1591-1593, 1987.
19. Zimmerman BF, Rawls HR, Querens AE : Prevention of *In vitro* secondary caries with an experimental fluoride-exchanging restorative resin. *J Dent Res* 63:689-692, 1984.
20. Arends J, Ruben J. : Fluoride release from a composite resin. *Quintessence Int* 19:513-514, 1988.
21. Cooley RL, Sandoval VA, Barnwell SE : Fluoride release and color stability of a fluoride-containing composite resin. *Quintessence Int* 19:899-904, 1988.
22. Dijkman GE, 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%. *Caries Res* 26:351-357, 1992.
23. Swift EJ : Fluoride release from two composite resins. *Quintessence Int* 20:895-897, 1989.
24. Temin SC, Csuros Z : Long-term fluoride release from a composite restorative. *Dent Mater* 4: 184-186, 1988.
25. Temin SC, Csuros Z, Mellberg JR : Fluoride uptake from a composite restorative by enamel. *Dent Mater* 5:64-65, 1989.
26. O'Connell JJ, Kwan SCM : Fluoride-containing dental materials. US patent 4, 772, 325, 1988.
27. Kadoma Y, Masuhara E, Anderson J : Controlled release of fluoride ions from methacryloyl fluoride-methyl methacrylate copolymers(2). Solution, hydrolysis and release of fluoride ions. *Macromolecules* 15:1119-1123, 1982.
28. Arends J, Dijkman GE, Dijkman AG : Review of fluoride release and secondary caries reduction by fluoridating composites. *Adv Dent Res* 9: 367-376, 1995.
29. Arends J, Ruben J, Dijkman AG : The effect of fluoride release from a fluoride-containing composite resin on secondary caries: an *In vitro* study. *Quintessence Int* 21:671-674, 1990.
30. Arends J, van der Zee Y : Fluoride uptake in bovine enamel and dentin from a fluoride-releasing composite resin. *Quintessence Int* 21:541-544, 1990.
31. Dijkman GE, de Vries J, Lodding A, Arends J : Long-term fluoride release of visible light-activated composites *In vitro* : a correlation with in situ demineralisation data. *Caries Res* 27:117-123, 1993.
32. Preston AJ, Mair LH, Agalmany EA, Higham SM : Fluoride release from aesthetic dental materials. *J Oral Rehab* 26:123-129, 1999.
33. Strother JM, Kohn DH, Dennison JB, Clarkson BH : Fluoride release and re-uptake in direct tooth coloured restorative materials. *Dent Mater* 14:129-136, 1998.
34. Young A, von der Fehr FR, Sonju T, Nordbo H : Fluoride release and uptake in vitro from a composite resin and two orthodontic adhesives. *Acta Odontol Scand* 54:223-228, 1996.
35. Forsten L : Short- and long-term fluoride release from glass ionomers and other fluoride-containing filling materials *In vitro*. *Scand J Dent Res* 98:179-85, 1990.

36. Cao DS, Hollis RA, Kicken C, Christensen RP : Fluoride release from glass ionomers, glass ionomer/resins, and composites. J Dent Res 73, Abstr. 675, 1994.
37. Dijkman GE, de Vries J, Arends J : Secondary caries dentine around composites: a wavelength-independent microradiographical study. Caries Res 28:87-93, 1994.
38. 고윤희 : 수종의 충전재와 이장재에서 유리되는 불소의 항우식 효과. 대한소아치과학회지 20:41-58, 1993.
39. Dionysopoulos P, Kotsanos N, Koliniotou-Koubia E, Papagodiannis Y : Secondary caries formation *In vitro* around fluoride-releasing restorations. Operative Dent 19:183-188, 1994.
40. Kraft U, Montage R, Hoyer I: Effect of fluoride released from filling materials on the formation of artificial enamel and dentine lesions. Caries Res. 33:306 Abs. 75, 1999.
41. 김대성, 최세영, 김경남 등 : 치아수복용 불소함유 glass filler의 제조 및 특성. 대한치과기재학회지 25:273-281, 1998.
42. Bowen RL, Rapson JE, Dickson G : Hardening shrinkage and hygroscopic expansion of composite resins. J Dent Res 61:654-658, 1982.
43. Ciucchi B, Bouillaguet S, Delaloye M, Holz X : Volume of the internal gap formed under composite restorations *In vitro*. J Dent 25:305-312, 1997.
44. Dahl JE, Eriksen HM : Reasons for replacement of amalgam dental restorations. Scand J Dent Res 86:404-407, 1978.
45. Mjor IA : Frequency of secondary caries at various anatomical locations. Operative Dent 10: 88-92, 1985.
46. Kerber LJ, Donly KJ : Caries inhibition by fluoride-releasing primers. Am J Dent 6:216-218, 1993.
47. Maltz M, Emilson CG : Susceptibility of oral bacteria to various fluoride salts. J Dent Res 61:786-791, 1982.
48. ten Cate JM, Arends J : Remineralization of artificial enamel lesions in vitro. Caries Res 11:277-286, 1977.
49. Donly K, Gomez C : *In vitro* demineralization-remineralization of enamel caries at restoration margins utilizing fluoride-releasing composite resin. Quintessence Int 25:355-358, 1994.
50. Donly KJ : Enamel and dentin demineralization inhibition of fluoride-releasing materials. Am J Dent 7:275-278, 1994.
51. Soderholm KJ, Zigan M, Ragan M, et al. : Hydrolytic degradation of dental composites. J Dent Res 63:1248-1254, 1984.
52. Carvalho AS, Cury JA : Fluoride release from some dental materials in different solutions. Oper Dent 24:14-19, 1999.
53. Browne RM, Tyas MJ : Biological testing of dental restorative materials in vitro—a review. J Oral Rehabil 6:365-374, 1979.
54. Hensten-Pettersen, Helgeland K : Evaluation of biologic effects of dental materials using four different cell culture techniques. Scand J Dent Res 85:291-296, 1977.
55. Hensten-Pettersen A : Comparison of the methods available for assessing cytotoxicity. Int Endo J 21:89-99, 1988.
56. 윤숙진 : 치과용 콤포머의 세포독성에 관한 연구. 대한치과기재학회지 25:125-132, 1998.
57. Ferracane JL, Mitchem JC, Adey JD : Fluoride penetration into the hybrid layer from a dentin adhesive. Am J Dent 11:23-28, 1998.
58. Grobler SR, Rossouw RJ, Van Wyk Kotze TJ : A comparison of fluoride release from various dental materials. J Dent 26:259-265, 1998.

Abstract

PROPERTIES OF LIGHT-CURED COMPOSITE RESINS CONTAINING SrF₂ GLASS FILLER

Hee-Jung Kim. D.D.S., Kyung-Nam Kim*. D.D.S., Ph.D.,
Byung-Jai Choi. D.D.S., Ph.D., Jong-Gap Lee, D.D.S., Ph.D.

Department of Pediatric Dentistry, Department of Dental Materials, College of Dentistry, Yonsei University*

The aim of this study was to investigate the fluoride release and some mechanical properties including 3-point bending strength, amount of abrasion, surface hardness, water sorption/solubility and cytotoxicity of the newly developed composite resins containing 8, 16, 24 wt% SrF₂ glass filler (VF8, VF16, VF24) and four commercially available composite resins, Heliomolar(HE), Verdonfil(VE), Z100(ZH) and Aelitefil(AE). To investigate cytotoxic effect, agar overlay assay was done. Amount of fluoride released into distilled water was measured over a 62-days period from VF8, VF16, VF24 and HE.

Results were as follows:

1. Experimental composite resins showed similar mechanical properties to commercial composite resins, but 3-point bending strength and surface hardness of experimental composite resins were inferior to ZH.
2. Over a 62-day period, the amount of fluoride released was ordered: VF24>VF16>VF8>HE. In experimental composite resins, the amount of fluoride released was 9-23 times greater than HE and seemed to be proportional to the content of SrF₂ glass filler.
3. Experimental composite resins and all control composite resins showed mild cytotoxicity.

This study showed significantly greater fluoride release from newly developed composite resins than control(HE) and addition of SrF₂ glass filler did not decrease mechanical properties or increase cytotoxicity of composite resin. The results from this study imply that newly developed composite resin have adequate mechanical properties, mild cytotoxicity and some potential for secondary caries prevention.

Key words : SrF₂ glass filler, Composite resin, Mechanical property, Fluoride release, Cytotoxicity.