

레진시멘트의 접착 내구성에 관한 연구

조민우 · 박상혁 · 김종률 · 최경규*
 경희대학교 대학원 치의학과 치과보존학교실

ABSTRACT

THE BONDING DURABILITY OF RESIN CEMENTS

Min-Woo Cho, Sang-Hyuk Park, Jong-Ryul Kim, Kyoung-Kyu Choi*

Department of Conservative Dentistry, Division of Dentistry, Graduate of Kyung Hee University

The objectives of this study was to evaluate the durability of 4 resin cements by means of microtensile bond strength test combined with thermocycling method and fractographic FE-SEM analysis.

Experimental groups were prepared according to thermocycling (0, 1,000, 5,000) and the kind of resin cements, those were Variolink II, Multilink, Panavia F 2.0, Rely X Unicem. Flat dentin surfaces were created on mid-coronal dentin of extracted third molars. Then fresh dentin surface was grounded with 320-grit silicon carbide abrasive papers to create uniform smear layers. Indirect composite block (Tescera, Bisco Inc., Schaumburg, IL, USA) was fabricated ($12 \times 12 \times 6 \text{ mm}^3$). It's surface for bonding to tooth was grounded with silicon carbide abrasive papers from 180- to 600-grit serially, then sandblasted with 20 - 50 μm alumina oxide. According to each manufacturer's instruction, dentin surface was treated and indirect composite block was luted on it using each resin cement. For Rely X Unicem, dentin surface was not treated. The bonded tooth-resin block were stored in distilled water at 37°C for 24 hours. After thermocycling, the bonded tooth-resin block was sectioned occluso-gingivally to 1.0 mm thick serial slabs using an Isomet slow-speed saw (Isomet, Buehler Ltd, Lake Bluff, IL, USA). These sectioned slabs were further sectioned to $1.0 \times 1.0 \text{ mm}^2$ composite-dentin beams. The specimens were tested with universal testing machine (EZ-Test, Shimadzu, Japan) at a crosshead speed of 1.0 mm/min with maximum load of 500 N. The data was analyzed using one-way ANOVA and Duncan's multiple comparison test at $p \leq 0.05$ level.

Within the limited results, we conclude as follows:

1. The bond strength of Variolink II was evaluated the highest among experimental groups and was significantly decreased after 1,000 thermocycling ($p < 0.05$).
2. The bond strength of Multilink was more affected by thermocycling than the other experimental groups and significantly decreased after 1,000 thermocycling ($p < 0.05$).
3. Panavia F 2.0 and Rely X Unicem showed the gradually decreased tendency of microtensile bond strength according to thermocycling but there was no significant difference ($p > 0.05$).

* Corresponding Author: **Kyoung-Kyu Choi**

Professor of Division of Dentistry,
 Graduate school of KyungHee University
 1, Hoegi Dong, Dongdaemun Gu, Seoul, Korea, 130-701
 Tel: 82-2-958-9337
 E-mail: choikkyu@khu.ac.kr

- 4. Adhesive based-resin cements showed lower bond strength with or without thermocycling than composite based-resin cements.
- 5. Variolink II & Multilink showed high bond strength and mixed failure, which was occurred with a thin layer of luting resin cement before thermocycling and gradually increased adhesive failure along the dentin surface after thermocycling.

The bonding performance of resin cement can be affected by application procedure and chemical composition. Composite based-resin cement showed higher bond strength and durability than adhesive based-resin cement. [J Kor Acad Cons Dent 32(4):343-355, 2007]

Key words: Bonding Durability, Resin Cement, Variolink II, Multilink, Panavia F 2.0, Rely X Unicem

- Received 2007.5.7., revised 2007.5.10., accepted 2007.5.14.-

I. 서 론

최근 임상에서 간접 레진 수복은 심미적인 요구가 커짐에 따라 점차 그 수요가 증가하는 추세이다. 이러한 술식은 직접 수복에 비해 수축 응력이 작기 때문에 술후 민감성을 감소시킬 수 있다. 간접 레진 수복을 위해서는 레진시멘트를 사용해야 하며 치아와 수복물 간에 직접 붙는 성질 때문에 inlay, onlay, crown, post, veneer 등 치과용 수복물 전반으로 점차 그 사용범위가 확대되고 있다¹⁻⁵⁾.

레진시멘트는 상아질 접착 과정을 기본으로 하며, 치아에 전처리 없이 사용하는 자가접착형 레진시멘트를 제외하고 전체 산부식형 또는 자가부식형 상아질 접착제를 필요로 한다⁶⁾.

레진시멘트는 상아질 접착제의 접착과정에 따른 방법과 레진시멘트의 중합방식에 따른 방법 그리고 접착 기능성 단량체의 유무와 시멘트의 조성에 따른 방법으로 분류한다.

레진시멘트의 중합방식에 따른 방법으로 자가중합, 이중중합, 광중합형 레진시멘트로 분류한다⁷⁾. 광중합형 레진시멘트는 색상, 조성 등이 다양하여 심미적이고 충분한 작업 시간을 가지며 광조사를 통해 빠른 경화를 가능하게 하는 장점을 가지지만 빛이 투과하지 못하는 곳에서는 사용할 수 없다. 이중중합 레진시멘트는 자가중합형과 광중합형의 특징을 동시에 가지게 되지만 대부분 광중합이 먼저 선행되지 않으면 결합강도가 저하되는 경향이 있다^{8,9)}. 자가중합 레진시멘트는 고정된 작업시간 및 경화시간을 가지고 빛이 투과할 수 없는 곳에 사용한다.

접착 기능성 단량체의 유무에 따라서 복합레진형 레진시멘트 (composite based-resin cement)와 접착형 레진시멘트 (adhesive based-resin cement)로 분류할 수 있다⁷⁾.

접착형 레진시멘트는 자가접착 능력을 지니며, 치질표면에 대해 스스로 간단한 부식 과정을 하거나 또는 직접 적용할 수 있는 레진시멘트이다. 이는 접착 기능성 단량체 (4-META, 10-MDP, Phenyl P, 4-MET 등)를 포함하고 있기 때문이다. 반면에 복합레진형 레진시멘트는 스스로 접착할 수 있는 능력이 없어 상아질 접착제를 적용한 후 이용하며 그 성분이 복합레진과 유사하기 때문에 심미성이 좋고 강도가 우수하다.

레진시멘트의 결합 내구성은 많은 부분 상아질 내 레진 침투층 (resin infiltrated layer)의 영향을 받게 되며 일상적인 저작이나 구강 내 온도변화, 이갈이, 기계적인 stress 등 많은 요소들이 영향을 끼치게 된다.

인산을 사용하여 상아질을 산부식한 후 접착 레진을 침투시키는 방식인 전체 산부식형 상아질 접착제는 상아질의 탈회된 교원질 구조를 따라 접착 레진이 탈회된 깊이만큼 침투하지 못할 수도 있다^{10,11)}. 즉 시간이 경과하면서 노출된 교원섬유가 가수분해되어 상아질과 접착제 계면에서 접착 레진의 결합강도가 저하될 수 있다¹²⁾. 이에 반해 자가부식형 접착제는 부식 및 침투능력은 제한되지만 상아질의 탈회와 접착 레진의 침투가 동시에 이루어져 탈회와 침투의 깊이 차이가 없으며 교원섬유의 노출 가능성 또한 낮아 산부식형 상아질 접착제에 비하여 상대적으로 결합이 안정적일 수 있다¹³⁾.

결합의 내구성을 평가하는 보편적인 방법은 37°C 수중보관으로 이루어지는 시효처리 (aging by storage in water)이다. 고분자 기질 내로 수분이 침투하여 고분자 사슬의 마찰력이 감소되고 기질이 팽창 (swelling)되어 물리적 성질이 저하되며 미중합 레진 단량체가 용출되어서 시간의 경과에 따라 상아질 접착제는 변성되거나 가수분해되어 레진-상

아질간의 결합이 실패하게 된다^{14,15}.

결합의 내구성을 평가하는 다른 방법에는 열순환 방법이 있으며 이는 가장 널리 사용되는 인공 시효처리 방법이다

열순환 방법은 5℃~55℃의 수중에서 반복적으로 침지 순환을 하는 것으로 수중보관 시효처리보다 효율적으로 접착 내구성을 평가할 수 있다¹⁵⁻¹⁷. 열순환기를 이용한 인공 시효처리는 다음의 두 가지 과정을 통해 이루어진다. (1) 첫째, 온수가 접착면의 노출된 교원섬유의 가수분해를 촉진시키고 미중합 레진 단량체들을 용출시킨다^{18,19}. (2) 두 번째는 치질과 수복물간 열팽창계수의 차이로 수축과 팽창이 반복되어 계면에 균열이 생기고 이를 통해 온수가 소통하게 되며 이는 더욱 균열이 확장되는 것을 촉진하게 된다 (percolation).

Krejci와 Lutz²⁰는 열순환 후에 범랑질 결합강도는 변하지 않았으나, 상아질 결합강도는 영향을 받아 감소하였으며, 상아질과 레진 사이의 누출이 존재하였다고 보고하였다.

본 연구는 4종의 레진시멘트를 통해 접착한 상아질과 간접 레진 수복물 간의 인장결합강도를 측정하고, 열순환 시

효처리 여부에 따른 결합강도를 비교하고, 주사전자현미경 관찰을 통하여 각 레진시멘트의 접착 내구성을 평가하고자 시행되었다.

II. 실험재료 및 방법

1. 실험재료

우식이 없는 건전한 48개의 제 3대구치를 발치하여 Tymol 용액에 보관한 후 미세인장결합강도 측정 및 전계방출형 주사전자현미경 (FE-SEM) 관찰에 사용하였다.

본 연구에서 사용한 레진시멘트는 Variolink II (Ivoclar Vivadent, Schaan, Lichtenstein), Multilink (Ivoclar Vivadent, Schaan, Lichtenstein), Panavia F 2.0 (Kuraray Medical Inc, Osaka, Japan), Rely X Unicem (3M ESPE, Seefeld, Germany)이다.

이들의 각 구성성분과 분류는 Table 1과 같으며 각 레진시멘트에 사용되는 상아질 접착제와 그 분류는 Table 2와 같다.

Table 1. Resin cements used in this study

Resin cements	Type	Curing mode	Composition	Lot Number
Variolink II (Ivoclar Vivadent Schaan, Lichtenstein)	Composite	Dual	Base Paste : BisGMA, UDMA, TEGDMA, DMA, barium sulfate, Ba-Al-F-Si glass, ytterbium trifluoride	J03646 J01609
Multilink (Ivoclar Vivadent Schaan, Lichtenstein)			Self	dimethacrylate, HEMA, barium glass filler, ytterbium trifluoride, silica filler, catalyst, stabilizer
Panavia F 2.0 (Kuraray, Osaka Japan)	Adhesive	Dual	A Paste : 10-MDP, bisphenol A polyethoxy dimethacrylate, hydrophobic dimethacrylate, hydrophilic dimethacrylate, benzoyl peroxide, silanated silica, colloidal silica, D,L-CQ	00176A
Rely X Unicem (3M ESPE, Seefeld Germany)			Dual	B Paste : bisphenol A polyethoxy dimethacrylate, hydrophobic dimethacrylate, hydrophilic dimethacrylate, N,N'-diethanol-P-toluidine, sodium 2,4,6-trisopropyl benzene sulfinate, silanated barium glass, silanated titanium oxide, sodium fluoride, colloidal silica
			Powder : glass powder, silica, calcium hydroxide, pigment, substituted pyrimidine, peroxy compound, initiator	240594
			Liquid : methacrylated phosphoric ester, dimethacrylate, acetate, stabilizer, initiator	

2. 실험방법

A. 실험군의 분류

4가지 레진시멘트를 이용하여 복합레진 block을 상아질 표면에 결합시킨 후, 각각 0, 1,000, 5,000번 열순환 회수에 따라 12개의 실험군으로 분류하였다.

B. 시편의 제작

48개의 건전한 제3대구치의 교합면 법랑질을 제거한 후 저속 diamond saw (Isomet, Buehler Ltd, Lake Bluff, IL, USA)로 연마하여 건전한 상아질 표면을 노출시킨 후 표면을 #320 SiC paper를 이용하여 연마하고 표준 도말층을 형성하였다.

복합레진 block을 Tescera (Bisco Inc., Schaumburg, IL, USA)를 사용하여 12 × 12 × 6 mm³의 크기로 제작하였다. 제작된 복합레진 block을 순차적으로 #180, #320, #600 SiC paper를 이용하여 연마하고 20 - 50 μm 산화알루미늄으로 10초간 표면 처리 (sandblast)하여 접착면을 형성하였다.

제조사사의 지시에 따라 상아질 접착제를 적용한 후, 치아표면에 각 레진시멘트를 적용하고 복합레진 block을 접착시켰다 (Table 3). Rely X Unicem은 치면 처리를 하지 않고 직접 시멘트를 적용하였다.

각 시멘트를 사용하여 12개의 치아에 접착시킨 후 광조사가 필요한 Variolink II, Panavia F 2.0, Rely X Unicem에서는 LED 광중합기 (Elipar FreeLight 2, 3M ESPE,

St. Paul, MN, USA)를 사용하여 40초간 중합시켰다 (Table 3).

C. 시편의 열순환

제작된 12개 실험군의 시편을 37℃ 증류수에 24시간 동안 보관한 후, 열순환을 시행하지 않은 즉시군 (T = 0), 1,000회군 (T = 1000), 5,000회군 (T = 5000)으로 나누어 열순환기 (항온수조기, TaeWon Tech, Sihung, Korea)에서 열순환을 시행하였다. 본 실험의 열순환기는 5℃ 및 55℃의 항온 수조로 구성되며, 시편이 수조에 머무르는 시간은 각각 15초이며 이동 시간은 6초가 소요되었다. 모든 열순환 과정은 프로그램에 의하여 자동으로 제어되도록 하였다 (Figure 1).

D. 미세인장결합강도 측정

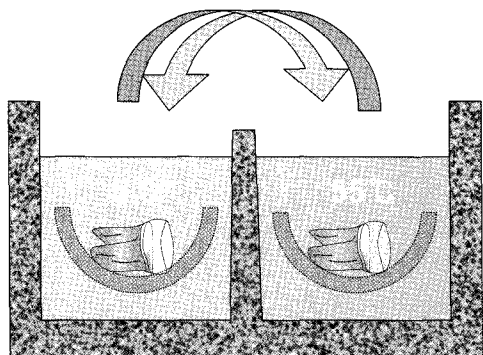
접착된 12개 실험군의 시편을 저속 diamond saw (Buehler, USA)를 이용하여 치아의 장축을 따라 1 mm의 두께로 절단하고, 이를 다시 수직 절단하여 단면적이 약 1 mm²가 되도록 막대형 시편을 제작하였다 (Figure 2). 절단된 시편을 미세인장결합강도 측정을 위한 jig에 Zapit (Palladium, USA)을 이용하여 부착한 후 universal testing machine (EZ Tester, Shimadzu, Japan)을 이용하여 1 mm/min의 속도로 인장응력을 가하여 미세인장결합강도를 측정하였다. 유의수준 0.05 level에서 one-way ANOVA / Duncan's test로 통계 분석하였다.

Table 2. Bonding system of resin cements used in this study

Resin cements	Bonding Type	Bonding system Composition	Lot Number
Variolink II (Ivoclar Vivadent Schaan, Lichtenstein)	Total etching	Excite DSC : Etchant : 37% phosphoric acid gel Adhesive : BisGMA, HEMA, ethanol, water, filler, CQ	J03640
Multilink (Ivoclar Vivadent Schaan, Lichtenstein)	Self etching	Primer A : water, initiator Primer B : phosphoric acid acrylate, HEMA, methacrylate modified polyacrylic acid stabilizer	J04346 J03234
Panavia F 2.0 (Kuraray Medical Inc, Osaka Japan)	Self etching	ED Primer II A : 2-hydroxyethyl methacrylate, 10-MDP, N-methacryloyl 5-aminosalicylic acid, N,N' - diethanol-P- toluidine, water ED Primer II B : 2-hydroxyethyl methacrylate, sodium bezen sulfinate, N-methacryloyl 5-aminosalicylic acid, N,N' -diethanol-P-toluidine, water,	00220B 00100A
Rely X Unicem (3M ESPE, Seefeld Germany)	Auto adhesive	none	240594

Table 3. Bonding procedure of resin cements used in this study

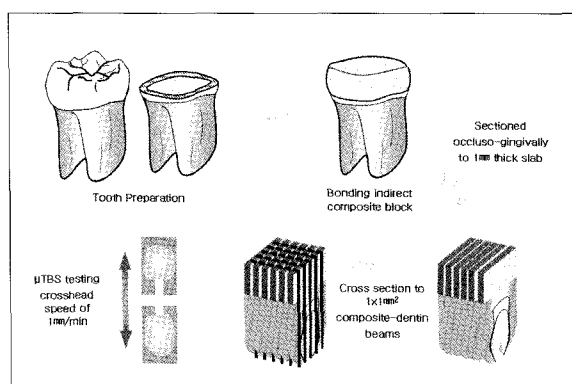
Resin cement	Bonding Procedure
Variolink II	<ol style="list-style-type: none"> 1. etch for 15s, wash and blot dry 2. apply Excite DSC for 10s, light cure for 10s 3. mix equal volume of base & catalyst 4. lute and light cure for 40s
Multilink	<ol style="list-style-type: none"> 1. mix Primer A & B 1:1 2. apply for 15s and wait 15s 3. dry with water & oil free air 4. mix Multilink paste 5. lute and wait 5 minutes
Panavia F 2.0	<ol style="list-style-type: none"> 1. mix ED primer II A & B 1:1 2. apply and wait 30s 3. gently air dry 4. mix equal volume of paste A & B 5. lute and light cure for 40s
Rely X Unicem	<ol style="list-style-type: none"> 1. mix Applicap capsule by Rotomix for 10s 2. lute and light cure for 40s



Thermocycling method

: dwelled for 15s at each bath and interval for 6s

: 0, 1000, 5000 cycles

Figure 1. Schematic presentation of thermocycling method.**Figure 2.** Schematic presentation of μ TBS testing.

E. 전계방출형 주사전자현미경(FE-SEM) 관찰
미세인장결합강도 실험 전에 열순환을 하지 않은 즉시군(T = 0)의 시편의 접착계면을 수직절단하여 노출된 접착면을 #1500, #2000 SiC paper와 ZnO 분말을 이용하여 연마하고 산부식 3초, NaOCl에 3분 처리한 후 gold sputtering (SC 502 sputter coater, VG Microtech, England) 하였고, 미세인장결합강도 실험후의 상아질측 파단면을 gold sputtering하여 FE-SEM (Leo Supra 55, Carl Zeiss, Germany; Genesis 2000, Edax, USA)을 이용하여 관찰하였다.

Ⅲ. 실험성적

1. 미세인장결합강도

Table 4는 4종류의 레진시멘트의 열순환 전후의 미세인장결합강도를 나타내고 있다.

Variolink II의 경우, 2단계 전체 산부식형 상아질 접착제

를 사용하는 복합레진형 레진시멘트로서 즉시균 (T = 0)에서 높은 결합 강도를 보여주고 있으며 1,000회 열순환 이후에 통계적으로 유의성 있는 결합강도의 감소가 관찰되었으나 ($p < 0.05$), 5,000회 이후에는 유의차가 없었다 (Figure 3).

Multilink는 1단계 자가부식형 상아질 접착제를 사용하며 1,000회 열순환 이후에 결합강도가 유의성 있게 감소되

Table 4. Microtensile bond strengths(MPa, mean strength \pm SD) of 12 experimental groups

	T = 0	T = 1000	T = 5000
Variolink II	51.95 \pm 12.07 ^a	42.40 \pm 16.44 ^b	40.32 \pm 13.41 ^b
Multilink	37.55 \pm 12.81 ^b	26.54 \pm 9.21 ^c	20.75 \pm 10.10 ^{cd}
Panavia F 2.0	22.25 \pm 12.15 ^{cd}	20.10 \pm 10.22 ^{cd}	18.24 \pm 8.55 ^{cd}
Rely X Unicem	18.31 \pm 6.94 ^{cd}	17.10 \pm 7.41 ^d	17.16 \pm 4.62 ^d

* Groups with the same superscripts are not statistically significant.

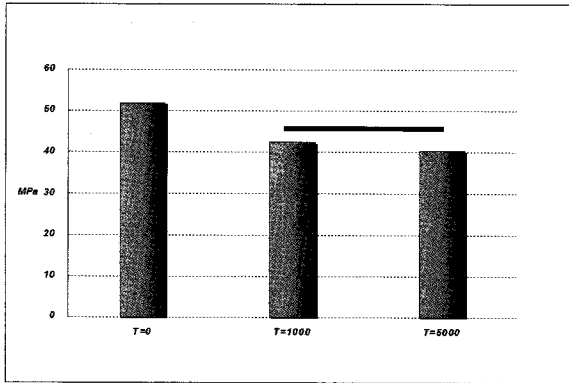


Figure 3. Microtensile bond strength of Variolink II.

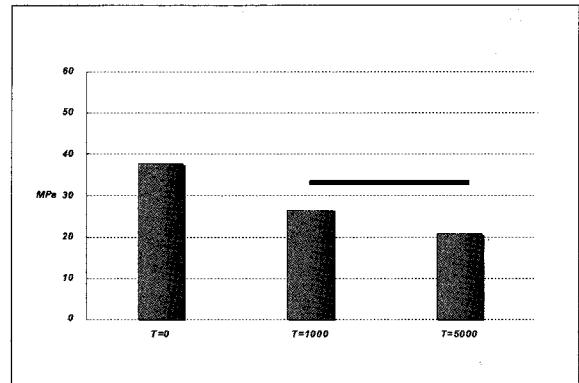


Figure 4. Microtensile bond strength of Multilink.

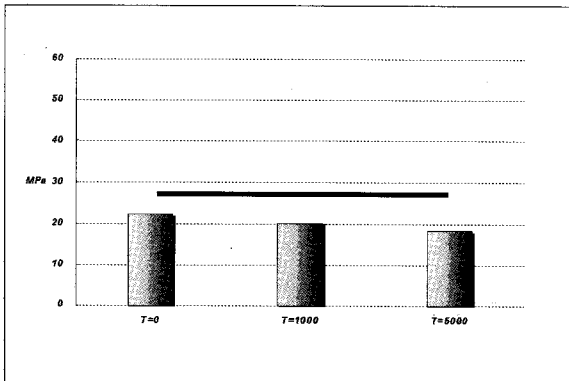


Figure 5. Microtensile bond strength of Panavia F 2.0.

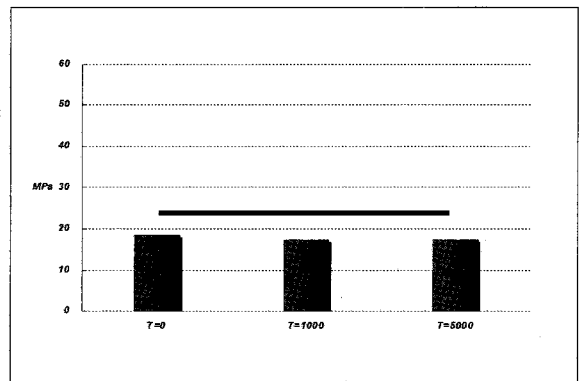


Figure 6. Microtensile bond strength of Rely X Unicem.

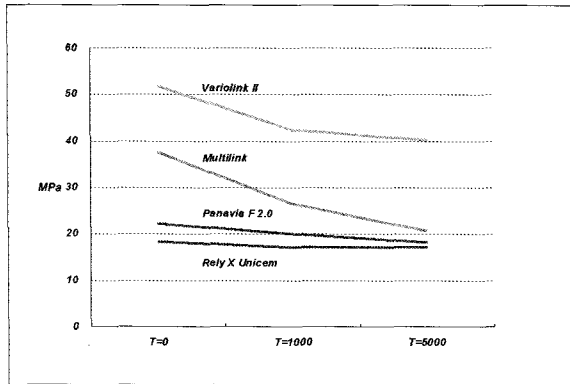
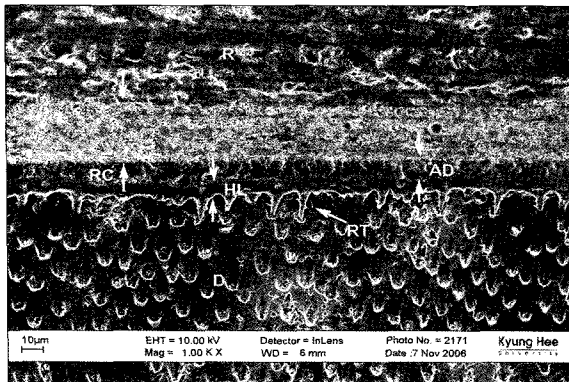


Figure 7. Comparison of μ TBS for each experimental group.

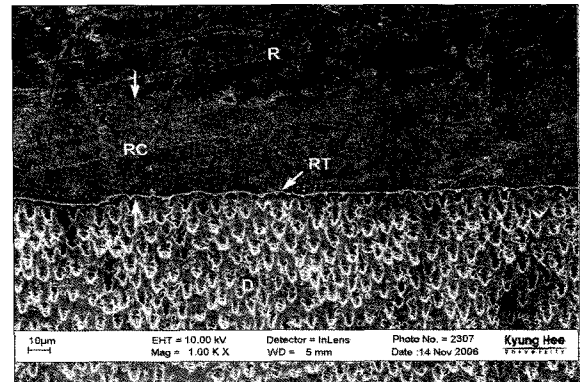
었고 ($p < 0.05$), 5,000회 이후에는 유의차가 없었다 (Figure 4).

Panavia F 2.0은 자가부식형 상아질 프라이머를 사용하는 접착형 레진시멘트로서 복합레진형 (Variolink II)보다 즉시군에서 결합강도가 많이 낮게 나타났다. 열순환 후 점진적으로 결합강도가 감소되는 양상을 보여주고는 있지만, 통계적으로 유의성은 없었다 ($p > 0.05$)(Figure 5).

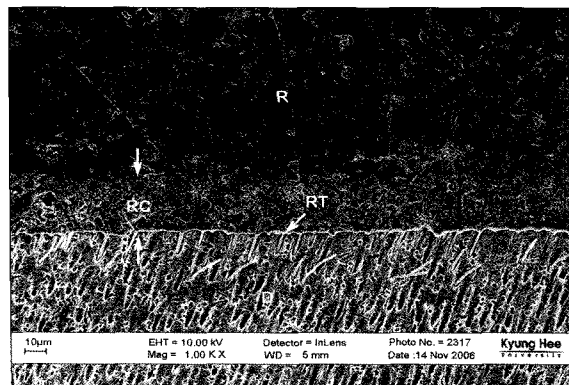
Rely X Unicem은 상아질 접착과정을 거치지 않는 자가 접착형 레진시멘트이며 4가지 레진시멘트 중 가장 낮은 결합강도를 보여주었다. 그러나 열순환 이후에 통계적으로 유의성 있는 차이를 보여주지 않았다 ($p > 0.05$)(Figure 6).



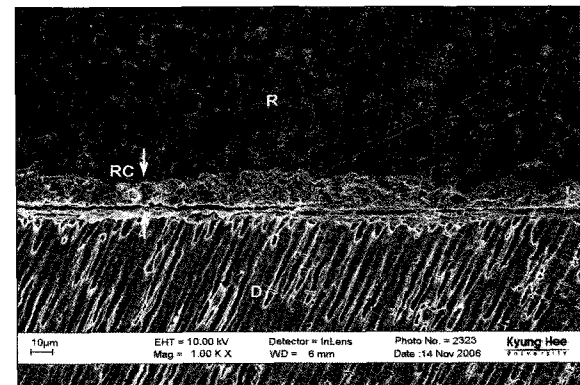
a



b



c



d

Figure 8. FE-SEM photograph illustrating the resin/dentin interface ($\times 1000$).

a. Cross-sectioned image of Variolink II. The thickness of resin cement was approximately $30 \mu\text{m}$, hybrid layer was $10 \mu\text{m}$, and the adhesive layer was likely thick. Uniform resin tags could be noticed. b. Cross-sectioned image of Multilink. The short and uncertain resin tags were formed. Hybrid layer was not certain. The thickness of resin cement was approximately $50 \mu\text{m}$. c. Cross-sectioned image of Panavia F 2.0. The thickness of resin cement was approximately $30 \mu\text{m}$, slender resin tags were formed and hybrid layer was not certain. d. Cross-sectioned image of Rely X Unicem. The thickness of resin cement was approximately $15 \mu\text{m}$ and hybrid layer and resin tag were not formed. Notice slightly detached interface between resin cement and dentin. (RC : Resin cement, AD : Adhesive layer, HL : Hybrid layer, RT : Resin tag, D : Dentin, R : Tescera composite resin)

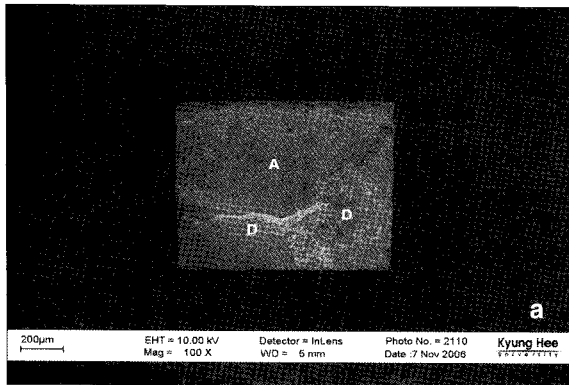
2. 전계방출형 주사전자현미경 (FE-SEM) 관찰

접착계면에 대한 FE-SEM 관찰에서 2단계 전체 산부식형 상아질 접착제를 사용하는 복합레진형 레진시멘트인 Variolink II에서 두꺼운 접착 레진층과 함께 균질의 혼성층이 형성되어 있고 레진 tag가 잘 형성되어 있었다 (Figure 8a). 1단계 자가부식형 상아질 접착제를 사용하는 Multilink에서는 혼성층이 불분명하였고 레진 tag는 약 5 μm 정도로 짧게 형성되어 있었다 (Figure 8b).

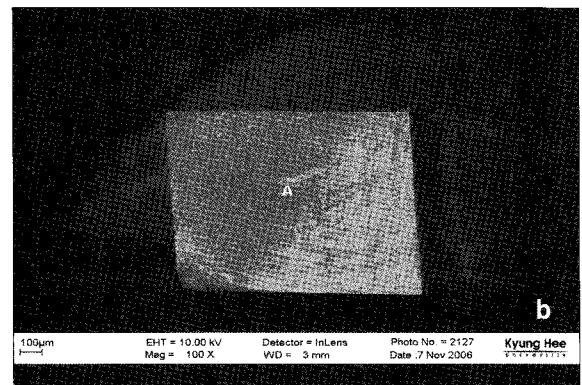
자가부식형 상아질 프라이머를 사용하는 Panavia F 2.0에서는 마찬가지로 혼성층이 레진시멘트층과 혼재되어 불분명하였으며 레진 tag는 가늘고 길게 형성되었다 (Figure

8c). 상아질 접착과정을 거치지 않는 Rely X Unicem은 혼성층과 레진 tag는 관찰되지 않았다 (Figure 8d).

과단면의 관찰에서 Variolink II의 열순환 하기 전 시편에서 혼합형 파괴양상이 관찰되었으며, 이후 열순환에 의해 접착성 파괴양상이 증가하는 경향을 나타내었다 (Figure 9, 13). Multilink의 경우, 열순환 하기 전 시편에서는 혼합형 파괴양상이 관찰되었으며, 열순환 이후 접착성 파괴양상을 보여 주었다 (Figure 10, 14). Panavia F 2.0의 경우 열순환 전후 접착성 파괴양상을 보여 주었다 (Figure 11). Rely X Unicem의 경우에는 접착층이 없으며 열순환 전 비균일한 레진 시멘트의 파괴가 관찰되었으나, 열순환 후 점차 균일한 파괴양상이 관찰되었다 (Figure 12).

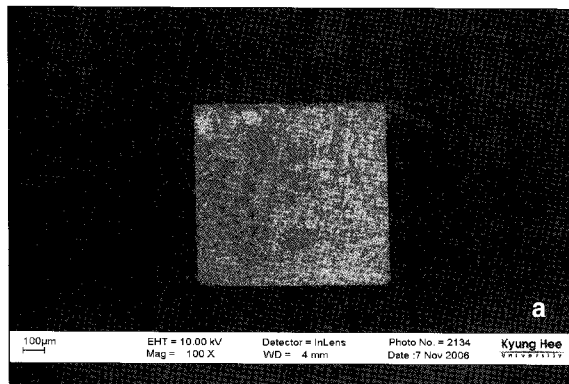


a : mixed failure without thermocycling

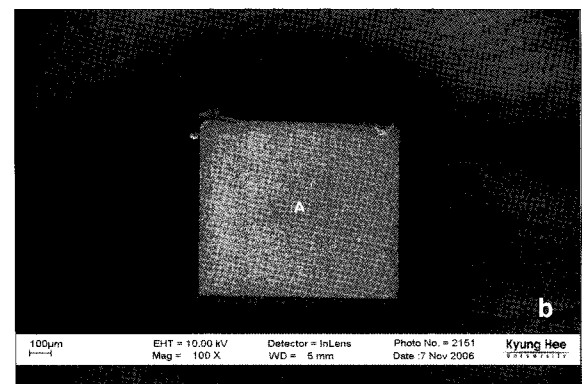


b : adhesive failure with thermocycling of 5,000 cycle

Figure 9. Debonded interface of Variolink II ($\times 100$). A : adhesive, D : dentin

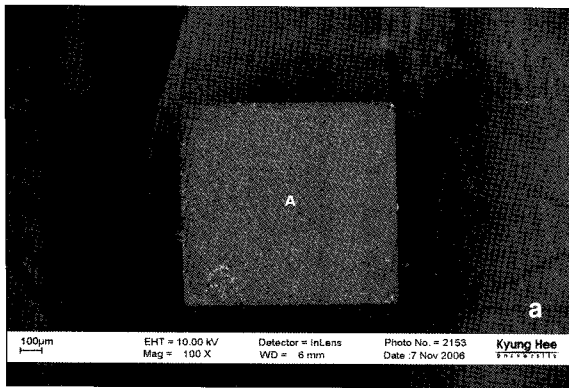


a : mixed failure without thermocycling

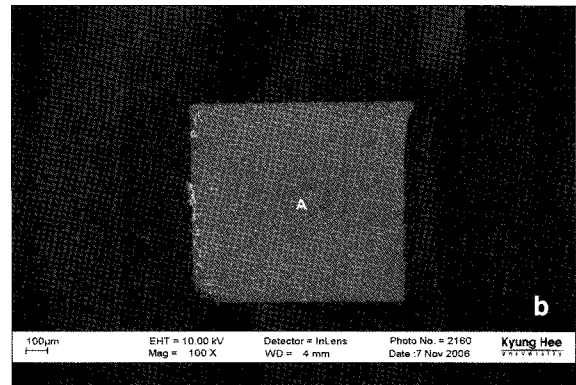


b : adhesive failure with thermocycling of 5,000 cycle

Figure 10. Debonded interface of Multilink ($\times 100$). A : adhesive

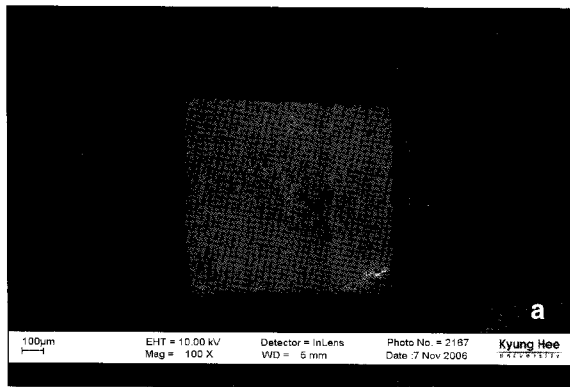


a : adhesive failure without thermocycling

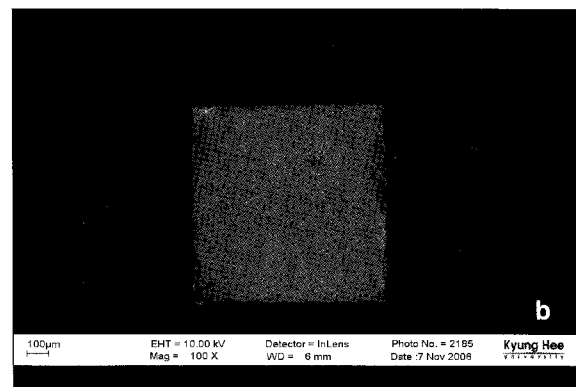


b : adhesive failure with thermocycling of 5,000 cycle

Figure 11. Debonded interface of Panavia F 2.0 ($\times 100$). A : adhesive



a : failure without thermocycling



b : failure with thermocycling of 5,000 cycle

Figure 12. Debonded interface of Rely X Unicem ($\times 100$).

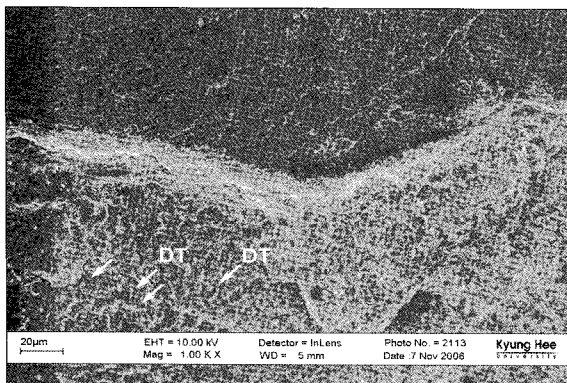


Figure 13. Debonded interface of Variolink II without thermocycling ($\times 1000$). Failure mode was mixed failure and dentinal tube was observed.

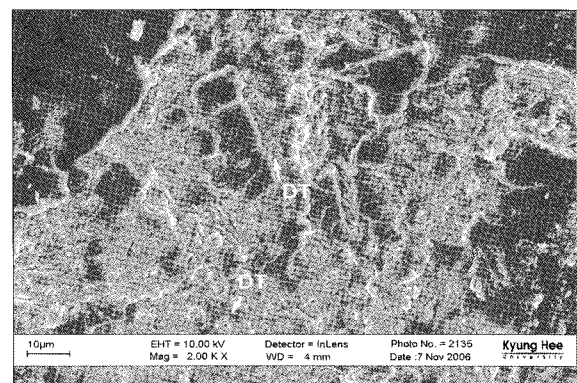


Figure 14. Debonded interface of Multilink without thermocycling ($\times 2000$). Failure mode was mixed failure and small dentinal tubule was observed.

IV. 총괄 및 고안

접착치과학은 괄목할 만한 성장을 이루었으며 이는 상아질 접착기술의 발전이 근간을 이루고 있다. 최근의 상아질 접착시스템에는 상아질과의 결합을 향상시키기 위하여 친수성을 지닌 레진 단량체가 포함되어 있다²¹⁾. 친수성 레진 단량체가 포함된 프라이머를 사용하는 전체 산부식형 접착제는 상아질 내 교원질을 탈회시키고 친수성 단량체가 그 공간 및 상아세관 내로 침투할 수 있게 해 준다²²⁾. 반면에 자가부식형 접착제는 충분한 산도를 가지고 도말층을 없애지 않고 용해 변형시켜 상아질과 접착한다²³⁾.

본 연구는 상아질 접착방식 및 성분에 따라 레진시멘트를 구분하고 열순환 전후의 결합강도를 비교하여 임상적으로 내구성 파악에 도움을 주고자 하였다. 본 연구에 사용된 레진시멘트는 상아질 접착방식에 따라 전체 산부식형 혹은 자가부식형 상아질 접착제를 사용하는 레진시멘트, 상아질 접착제를 사용하지 않는 레진시멘트로 분류할 수 있다. 또한 접착 능력을 가지는 기능성 단량체의 유무에 따라 복합레진형 레진시멘트 (composite based-resin cement)와 접착형 레진시멘트 (adhesive based-resin cement)로 분류할 수 있다.

2단계 전체 산부식형 접착제를 사용하는 Variolink II의 경우는 복합레진형 레진시멘트이다. 실험결과에서 다른 레진시멘트보다 월등히 높은 미세인장결합강도를 보여주었는데, 이는 산부식과 상아질 접착제의 도포를 통해 다른 자가부식형 접착제와는 달리 두꺼운 혼성층과 굵고 깊은 레진 tag가 형성되었기 때문으로 생각된다 (Figure 8a). 더욱이 복합레진형 레진시멘트로서 다른 접착형 레진시멘트보다 성분이 복합레진에 가깝기 때문에 물리적 성질이 우수했기 때문으로 볼 수 있다. 열순환 이후에 결합강도가 감소하였고 5,000회 열순환 이후에는 즉시군 (T = 0) 보다 약 22%가 감소되는 결과를 보여주었다 (Table 4). 또한 FE-SEM을 통한 파단면 관찰을 통해 열순환을 할수록 접착성 파괴가 일어남을 알 수 있었다 (Figure 9).

전체 산부식형 접착제를 적용할 때, 탈회된 상아질의 교원질 구조 내로 완전히 침투가 되지 않는 층 (hybridoid layer)이 발생하고, 용매가 모두 제거되지 않으면 친수성 단량체가 다량 존재하기 때문에 불안정한 혼성층이 형성될 수 있다. 따라서 열순환 시행 후 가수분해가 일어나 결합강도의 저하 또는 변연누출 등이 일어나기 쉽다²⁴⁾. Armstrong 등²⁵⁾은 상아질 접착 후 수중에서 15개월 보관하고 미세인장 결합강도를 측정 한 결과, 2단계 전체 산부식형 접착제의 결합강도는 3단계 또는 2단계 자가부식형 접착제에 비하여 시간 경과에 따라 결합강도가 감소한다고 하였으며, 파괴양상은 2단계 전체 산부식형 접착제에서 시간 경과에 따라 접착성 파괴가 증가하였다고 보고하였다.

즉 Variolink II의 경우 결합강도의 감소는 열순환 후 접착층의 내구성이 약화되었기 때문으로 사료된다.

Multilink는 자가부식형 레진시멘트로서 6세대 상아질 접착제를 사용한다. 구성 성분상 HEMA를 포함하기 때문에 접착형 레진시멘트의 일종으로 볼 수 있지만 접착력의 대부분을 상아질 접착제가 담당하게 된다 (Table 1). HEMA를 제외하고는 복합레진 성분과 유사하고 다른 접착형 레진시멘트 보다 즉시군 (T = 0)에서 결합강도가 높게 나타났다. 결합강도는 1,000회 열순환 이후 유의성 있게 감소되었으며 ($p < 0.05$), 5,000회 이후에는 즉시군보다 약 44%가 감소되는 결과를 보여주었다 (Table 4).

6세대 자가부식형 상아질 접착제는 시술과정의 단순화 및 편의성이라는 장점을 가지는 반면 접착 신뢰성과 내구성에는 아직까지 문제가 있음을 지적받고 있다²⁶⁾. Armstrong 등²⁶⁾은 6세대 자가부식형 상아질 접착제가 와동형태와 수중 시효처리에 매우 민감하다고 하였다. 6세대 자가부식형 접착제의 내구성은 5세대 접착제에 비하여 낮은 것으로 보고되고 있으며, 이는 임상적 접착력 평가에 주로 이용되는 5급 와동에 대한 연구에서 입증되었다^{27,28)}.

Multilink의 열순환 이후 급격한 결합강도 감소는 자가부식 능력의 제한으로 접착 레진의 불완전한 침투가 원인으로 추정된다 (Figure 8b). FE-SEM을 통한 파단면 관찰에서 초기 열순환 전에는 혼합형 파괴양상을 보이나 열순환 이후 접착성 파괴양상을 보여 이 설명에 부합한다 할 수 있을 것이다 (Figure 10).

Panavia F 2.0은 자가부식형 프라이머를 사용하며 접착 기능성 단량체인 10-MDP를 포함하고 있는 접착형 레진시멘트이다. 즉시군 (T = 0)의 결합강도는 복합레진형 레진시멘트와 비교하여 낮은 값을 보여주고 있으며, 열순환 이후에 점진적인 감소양상을 보여주고는 있지만 통계적인 유의차는 없었다 ($p > 0.05$) (Table 4, Figure 5).

Panavia F 2.0은 상아질 접착제의 적용과정이 일반적인 레진시멘트와는 다른 방식이다. ED primer II는 "2 bottle"로 구성 되어있고 혼합하여 도포하는 방식이다. 즉 ED primer II를 도포하고 접착 레진의 도포 없이 시멘트를 적용하는 것으로 이는 시멘트 내의 기능성 단량체가 직접 상아질에 작용하도록 설계된 것이다.

동일 회사의 5세대 자가부식형 상아질 접착제인 Clearfil SE bond의 경우 'primer'와 'adhesive'로 구성되어 있으며 이 제품의 'primer'는 Panavia F 2.0에 포함된 ED primer II와 그 성분이 유사하다. SE bond의 'adhesive'는 접착 레진으로 접착 기능성 단량체 (10-MDP)와 레진 기질, 미세필러를 함유하고 있다.

Panavia F 2.0의 경우 열순환 후 결합강도가 별로 감소되지 않았는데, 이것은 5세대 자가부식형 상아질 접착제가 열순환에 영향을 적게 받는다는 연구에서 그 원인을 찾을

수 있을 것이다²⁹⁻³¹). Panavia F 2.0은 ED primer II를 통한 상아질 전처리 후에 접착형 시멘트를 직접 적용하기 때문에 2단계 자가부식형 상아질 접착제인 Clearfil SE bond와 유사한 방식으로 접착되는 것이다.

파단면 관찰을 통해서 Panavia F 2.0은 열순환을 하지 않았을 때 접착성 파괴가 일어나는 것을 알 수 있는데 (Figure 11), 이것은 이 시멘트의 낮은 결합강도와 자가부식형 상아질 접착제의 특성으로 혼성층 상방에서 분리되었기 때문으로 사료된다.

Rely X Unicem은 상아질 접착제를 사용하지 않는 자가 접착형 레진시멘트로서 기능성 단량체로 methacrylated phosphoric ester를 함유하고 있으며 산부식과 동시에 레진 기질로 작용을 한다 (Table 1). 하지만 FE-SEM 관찰에서 다른 레진시멘트와는 달리 혼성층이나 레진 tag가 형성되지 않았다 (Figure 8d). 이는 선행들의 연구와 같은 양상을 보여주고 있다^{32,33}). Rely X Unicem은 다이아몬드 버 등의 사제로 형성된 거칠고 불규칙한 상아질 표면을 미약하게 탈회시키고 기계적인 점합층을 형성한다³²). 이에 따라 낮은 결합강도가 보고되었고 본 실험에서도 확인되었다. 하지만 열순환 이후 결합강도의 감소가 적게 나타났으며 (Table 4), 이는 접착층이 거의 존재하지 않는 이 레진시멘트의 특성으로 이해할 수 있을 것이다.

본 연구에서 산부식 과정을 거치고 상아질 접착제를 적용하는 복합레진형 레진시멘트로 Variolink II를 사용하였다. 레진시멘트를 적용할 때 상아질 접착제의 접착력에 의존하게 되는 복합레진형 레진시멘트는 현재까지 발전된 상아질 접착기술에 의해서 그 결합강도가 매우 우수하며 본 실험에서도 또한 확인되었다.

Multilink의 경우 HEMA를 포함하고 있어 완전한 복합레진형으로 분류할 수는 없지만 접착력의 상당 부분이 상아질 접착제에 의한 것으로 생각된다. 이것은 열순환 이후에 결합강도가 유의성 있게 감소되었고, 이는 6세대 자가부식형 상아질 접착제들에서 나타나는 내구성이 약화된다는 보고와 일치하기 때문이다.

이를 종합할 때 복합레진형 레진시멘트는 적절한 상아질 접착제를 함께 사용할 경우 높은 내구성과 결합강도를 가질 것으로 생각된다.

Panavia F 2.0에서는 상아질 전처리로 ED primer II를 사용하였다. Carvalho 등⁶)은 Panavia F를 사용할 때 부가적으로 레진층을 도포하면 결합강도가 증가됨을 보고하였다. 본 실험과 유사한 방식으로 진행되었던 선행 연구에서 김 등³⁴)은 Panavia F와 Clearfil SE bond를 사용하였을 경우, 미세인장결합강도가 약 35.7 MPa까지 증가한다고 보고하였다. 따라서 Panavia F 2.0을 적용할 때에는 부가적인 접착 레진의 도포가 결합강도와 내구성을 증가시킬 수

있을 것으로 사료되며 이는 제조사에서 참고할 수 있을 것이다.

Rely X Unicem은 레진시멘트가 나아가야 할 다른 방향을 제시하고 있는 선행 재료라 할 수 있다. 본 연구의 열순환이 최대 5,000회 이므로 이를 임상에 적용하거나 일반화된 실험방법으로 평가하기는 어려울 것이다. 하지만 전처리 또는 접착과정이 없는 새로운 개념의 레진시멘트는 초기 결합강도는 다른 레진시멘트에 비하여 현저히 낮지만 안정성에서는 유리한 측면이 있어 앞으로 이에 대한 논의와 연구가 더 필요할 것으로 생각된다.

본 연구는 열순환으로 최대 5,000회를 시행하였고 교합압이 작용하는 환경은 고려치 않았다는 점에서 임상적으로 적용시키는 데에 한계가 있다. 열순환 횟수를 더 증가시켰을 경우, 결합강도의 감소양상은 본 연구 결과와 상이할 수도 있을 것이다. 하지만 본 실험 결과에 국한하여 볼 때, 적절한 상아질 전처리와 접착과정을 행한다면 복합레진형 레진시멘트는 접착형 레진시멘트보다 결합강도와 내구성이 우수하다고 할 수 있을 것이다.

앞으로 이에 대한 지속적인 연구가 진행되어야 할 것으로 생각한다.

V. 결 론

서로 다른 접착과정을 갖는 4가지 레진시멘트를 이용하여 상아질에 간접 레진으로 수복을 하였고 이 시편의 열순환 0회, 1,000회, 5,000회 시효처리 후의 미세인장결합강도를 측정하였다. 접착계면과 파단면을 FE-SEM을 통하여 관찰한 결과 다음의 결론을 얻었다.

1. Variolink II의 결합강도는 다른 실험군보다 높게 나타났으며, 1,000회 열순환 후 유의성 있게 감소되었다 ($p < 0.05$).
2. Multilink의 결합강도는 열순환에 가장 많은 영향을 받았으며 1,000회 열순환 이후 유의성 있게 감소되었다 ($p < 0.05$).
3. Panavia F 2.0과 Rely X Unicem의 결합강도는 열순환에 의하여 감소되지 않았다 ($p > 0.05$).
4. 접착형 레진시멘트는 복합레진형 레진시멘트에 비해서 열처리 전후 모두 낮은 결합강도를 보여주었다.
5. 결합강도가 높은 Variolink II와 Multilink에서는 혼합형 파괴양상을 보였고, 결합강도가 낮은 Panavia F 2.0에서는 접착성 파괴양상을 나타내었다.

접착성 간접 수복물의 결합강도와 내구성은 레진시멘트의 접착과정과 종류, 형태에 의해 영향을 받기 때문에 이들의 적절한 선택과 올바른 사용이 성공적인 수복을 위해 중요하다.

참고문헌

1. Manhart J, Scheibenhogen Fuchsbrunner A, Chen HY, Hiekel R. A 2-year clinical study of composite and ceramic inlays. *Clin Oral Invest* 4:192-8, 2000.
2. Peumans M, Van Meerbeek B, Lambrechts P, Vanherle G. Porcelain Veneers; a review of the literature. *J Dent* 28:163-77, 2000.
3. Mitchell CA, Abbariki M, Orr JF. The influence of luting cement on the probabilities of survival and modes of failure of cast full-covered crowns. *Dent Mater* 16:198-206, 2000.
4. Knox J, Krajc B, Hubsch PF, Middleton J, Jones ML. An evaluation of the influence of orthodontic adhesive on the stresses generated in a bonded bracket finite element model. *Am J Ortho Dent Orthop* 119:43-53, 2001.
5. el-Mowafy O, Rubo MH. Retention of a posterior resin-bonded fixed partial denture with a modified design : an in vitro study. *Int J Prosthodont* 13:425-31, 2000.
6. Carvalho RM, Pegoraro TA, Tay FR, Pegoraro LF, Pashley DH. Adhesive permeability affects coupling of resin cements that utilizes self-etching primers to dentine. *J Dent* 32:55-65, 2004.
7. Kramer N, Lohbauer U, Frankenberger R. Adhesive luting of indirect restorations. *Am J Dent* 13:60D-76D, 2000.
8. Hasegawa EA, Boyer DB, Chan DC. Hardening of dual-cured cements under composite resin inlays. *J Prosthet Dent* 66:187-92, 1991.
9. el-Badrawy WA, el-Mowafy OM. Chemical versus dual curing of resin inlay cements. *J Prosthet Dent* 73:515-24, 1995.
10. Primenta LAF, Amaral CM, Bredrane de Castro AKB, Ritter AV. Stability of dentin bond strengths using different bonding techniques after Total-etch, deproteinization and self-etching. *Oper Dent* 29:592-598, 2004.
11. Paul SJ, Welter DA, Ghazi M, Pashley D. Nanoleakage at the dentin adhesive microtensile bond strength. *Oper Dent* 24:181-188, 1999.
12. Giannini M, Seixas CAM, Reis AF, Pimenta LAF. Six-month storage-time evaluation of one-bottle adhesive systems to dentin. *J Esth Rest Dent* 15:43-49, 2003.
13. Tay FR, Pashley DH, Yoshiyama M. Two modes of nanoleakage expression in single-step adhesives. *J Dent Res* 81:472-476, 2002.
14. Sano H, Yoshikawa T, Pereira PNR, Kanemura N, Morigami M, Tagami J, Pashley D. Long-term durability of dentine bonds made with a self-etching primer. *J Dent Res* 78:906-911, 1999.
15. Kato G, Nakabayashi N. The durability of adhesion to phosphoric acid etched, wet dentine substrates. *Dent Mater* 14:347-352, 1998.
16. Hakimeh S, Vaidyanathan J, Houpt ML, Vaidyanathan TK, Hagen SV. Microleakage of compomer class V restorations: effect of load cycling, thermal cycling, and cavity shape differences. *J Prosthet Dent* 83:194-203, 2000.
17. Wendt SL, McInnes PM, Dickinson GL. The effect of thermocycling in microleakage analysis. *Dent Mater* 8:181-184, 1992.
18. Miyazaki M, Sato M, Onose H, Moore BK. Influence of thermal cycling on dentin bond strength of two-step bonding systems. *Am J Dent* 11:118-122, 1998.
19. Hashimoto M, Ohno H, Kaga M, Endo K, Sano H, Oguchi H. In vivo degradation of resin-dentin bonds in humans over 1 to 3 years. *J Dent Res* 79:1385-1391, 2000.
20. Krejci I, Lutz F. Mixed class V restorations: the potentials of dentine bonding. *J Dent* 18:263-270, 1990.
21. Suh BI, Feng L, Pashley DH, Tay FR. Factors contributing to the incompatibility between simplified-step adhesives and chemically-cured or dual-cured composites. Part III. Effect of acidic resin monomers. *J Adhes Dent* 5:267-282, 2003.
22. Attal JP, Asmussen E, Degrange M. Effects of surface treatment on the free surface energy of dentin. *Dent Mater* 10:259-264, 1994.
23. Tay FR, Pashley DH. Aggressiveness of contemporary self-etching systems. I: Depth of penetration beyond dentin smear layers. *Dent Mater* 17:296-308, 2001.
24. Frankenberger R, Strobel WO, Lohbauer U, Kramer N, Petschelt A. The effect of six years of water storage on resin composite bonding to human dentin. *J Biomed Mater Res Part B: Appl Biomater* 69:25-32, 2004.
25. Armstrong SR, Vargas MA, Fang Q, Laffoon JE. Microtensile bond strength of a total-etch 3-step, total-etch 2-step, self-etch 2-step, and a self-etch 1-step dentin bonding system through 15-month water storage. *J Adhes Dent* 5:47-56, 2003.
26. Tay FR, Pashley DH. Dental adhesives of the future. *J Adhes Dent* 4:91-103, 2002.
27. Brackett MG, Dib A, Brackett WW, Estrada BE, Reyes AA. One-year clinical performance of a resin-modified glass ionomer and a resin composite restorative material in unprepared Class V restorations. *Oper Dent* 27:112-6, 2002.
28. Türkün SL. Clinical evaluation of a self-etching and a one-bottle adhesive system at two years. *J Dent* 31:527-534, 2003.
29. Takahashi A, Inoue S, Kawamoto C, Ominato R, Tanaka T, Sato Y, Pereira PNR, Sano H. In vivo long-term durability of the bond to dentin using two adhesive systems. *J Adhes Dent* 4:151-159, 2002.
30. Miyazaki M, Sato M, Onose H, Moore BK. Influence of thermal cycling on dentin bond strength of two-step bonding systems. *Am J Dent* 11:118-122, 1998.
31. Nikaido T, Kunzelman KH, Chen H, Ogata M, Harada N, Yamaguchi S, Cox CF, Hickel R, Tagami J. Evaluation of thermal cycling and mechanical loading on bond strength of a self-etching primer system to dentin. *Dent Mater* 18:269-275, 2002.
32. Jan DM, Marcos V, Kirsten VL, Kazuhiro H, Paul L, Bart VM. Bonding of an auto-adhesive luting material to enamel and dentin. *Dent Mater* 20:963-971, 2004.
33. Bin Y, Klaus L, Rainer A, Matthias K. Microtensile bond strength of three luting resins to human regional dentin. *Dent Mater* 22:45-46, 2006.
34. 김도완, 최경규, 박상진. 자가부식형 상아질접착제와 레진시멘트와의 적합성에 관한 연구. *대한치과보존학회지* 30:493-504, 2005.

국문초록

레진시멘트의 접착 내구성에 관한 연구

조민우 · 박상혁 · 김종률 · 최경규*

경희대학교 대학원 치의학과 치과보존학교실

4종의 레진시멘트를 통한 상아질과 간접 레진 수복물 간의 인장결합강도를 열순환 시효처리 여부에 따라 측정하여 비교하고, 주사전자현미경 관찰을 통하여 각 레진시멘트의 접착 내구성을 평가하고자 시행하였다. 48개의 건전한 제3대구치의 상아질 표면을 평탄하게 노출시키고 #320 grit Sic Paper로 연마하였다. 복합레진 블록을 제작하여 #600 grit Sic Paper로 연마한 후에 접착면을 Sandblast로 처리하였다. 각각의 레진시멘트로 제조사 지침에 따라 적용하여 복합레진 블록을 상아질 표면에 접착하였다. 이후 제작된 시편을 열순환시키지 않거나, 1,000회, 5,000회 열순환 시킨 후 (5°C - 55°C) 미세인장결합강도를 측정하였다. 열순환 전 시편의 접착계면 (수직절단면)과 파절된 시편의 상아질 파단면을 전자현미경 관찰하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. Variolink II의 결합강도는 다른 실험군보다 높은 결합강도를 보여주었으며, 1,000회 열순환 후 유의성 있게 결합강도가 감소되었다 ($p < 0.05$).
2. Multilink의 결합강도는 열순환에 가장 많은 영향을 받았으며 1,000회 열순환 이후 유의성 있게 감소되었다 ($p < 0.05$).
3. Panavia F 2.0과 Rely X Unicem의 결합강도는 열순환에 의하여 감소되지 않았다 ($p > 0.05$).
4. 접착형 레진시멘트는 복합레진형 레진시멘트에 비해서 열처리 전후 모두 낮은 결합강도를 보여주었다.
5. 결합강도가 높은 Variolink II와 Multilink에서는 혼합형 파괴양상을 보였고, 결합강도가 낮은 Panavia F 2.0에서는 접착성 파괴양상을 나타내었다.

이상의 연구 결과를 토대로 적절한 전처리와 접착제를 도포한다면 복합레진형 레진시멘트는 접착형 레진시멘트보다 결합강도와 그 내구성이 우수하다고 할 수 있을 것이다. 접착성 간접 수복물의 초기 결합강도와 내구성은 레진시멘트의 접착과정과 종류, 형태에 의해 영향을 받기 때문에 이들의 적절한 선택과 올바른 사용이 성공적인 수복을 위해 중요하다.

주요어: 접착 내구성, 레진시멘트, Variolink II, Multilink, Panavia F 2.0, Rely X Unicem