

수종의 저장 용액에서 나노필러를 함유한 복합레진의 필러의 용출량에 관한 연구

양규호 · 허수경 · 최남기 · 김선미

전남대학교 치의학전문대학원 소아치과학교실 및 치의학연구소 및 2단계 BK21

국문초록

본 연구는 최근 시판되고 있는 4종의 복합레진 Palfique Estelite sigma® (Tokuyama Dental Corp., Tokyo, Japan), Z-350® (3M ESPE, USA), Ceram X duo E3®, Ceram X duo D3® (Dentsply, Konstanz, Germany)이 3가지 액체 환경에 노출될 때 시간에 따라 필러의 용출 양상이 변하는지 알아보고 이를 비교 분석하였다.

필러의 용출량을 평가하기 위해 내경 10mm, 두께 3mm인 테프론 몰드를 이용하여 시편을 제작하였다. 각각의 시편을 5ml의 0.1N NaOH 용액, 증류수, 인공타액이 담긴 폴리에틸렌 용기에 담구고 37℃ 오븐에서 보관하였다. Si, Ba의 용출량을 알아보기 위해 ICP-AE 기기를 이용하여 0.1N NaOH 용액에 담군 시편은 2주 후에, 증류수와 인공타액에 담군 시편은 1개월 간격으로 5회에 걸쳐 정량 분석하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

1. 0.1N NaOH에서 필러의 용출량은 모든 시편에 대해서 유의하게 높았다 ($p < 0.001$).
 2. 증류수에 저장하였을 때, Si 용출량은 Z-350가 가장 적고, 인공 타액에 저장하였을 때, Si 용출량은 Estelite에서 가장 적었다.
 3. 저장용액에 따른 원소의 용출량에서 모두 유의한 평균차이를 보였다($p < 0.001$)
 4. 인공타액에 저장된 시편이 증류수에 저장된 시편보다 시간이 증가할수록 Ba와 Si의 용출량이 더 많았다.
 5. 저장기간에 따른 필러의 용출량은 저장 용액 간, 재료 간에 유의한 상관관계를 보였다($p < 0.001$).
- 이상을 통해 나노필러를 함유한 복합레진이 수분환경에 노출되었을 때 필러 입자들의 지속적인 용출이 일어남을 확인할 수 있었다.

주요어 : 복합레진, 나노필러, 0.1N NaOH, 인공타액, 증류수, 필러 용출량

I. 서 론

일반적으로 소아의 경우 성인에 비해 교합력이 약하고 유구치는 탈락하기 때문에 탈락시까지만 유지되는 것으로 충분하다고 생각하는 사람들도 있다^{1,2)}. 하지만 소아에서도 역시 재료들이 장기간 구강 내 환경에 노출되어 교모, 수분흡수, 착색 등의 요인으로 수복물 표면의 마모와 변색 및 수복물 자체의 파괴가 발생할 수 있다는 점을 간과하여서는 안 된다^{3,4)}.

복합레진은 치아의 색상을 표현해 줄 수 있는 심미성과 구강 내 환경에 대한 내구성 및 산부식된 치아의 표면에 화학적으로 결합하여 사용되어 대중화되었고 소아치과 영역에서도 그 사용이 증가하고 있다. 하지만 복합레진의 바람직하지 못한 특성들

이 증가하고 있어 때론 충전된 복합레진 수복물의 대체를 필요로 한다. 주로 그 원인은 불충분한 마모 저항과 변연 폐쇄, 그리고 불충분한 색조 안정성 등과 관련된 좋지 않은 안정성이다⁵⁻⁷⁾. 따뜻하고, 습윤한 구강내 환경에서 다른 치과 수복 재료들과 마찬가지로 복합레진은 충분한 안정성을 유지하는 것이 중요하다. 그러나, 복합레진이 점액성 환경에 노출되었을 때, 기계적 성질과 마모 저항성을 저하시킨다고 알려져 있다⁸⁻¹²⁾. 앞선 연구들은 물에서 복합레진으로부터 필러 성분이 용출됨을 보여줬다^{11,13)}. 물질의 소실은 해부학적 형태의 변형을 가져오게 되어 일부 연구자들은 생역학적 의미에서 볼 때 용해의 한 부분으로 생각하기도 한다^{14,15)}. 이는 중합체 구조와 필러의 수용성 저하에 기여하며, 수분-유도 필러 기질 결합 실패를 일으킨다^{13,16)}. 따라

교신저자 : 양 규 호

광주광역시 북구 용봉동 300번지 전남대학교 치의학전문대학원 소아치과학교실/062-530-5668/ helloworld@hanmail.net

원고접수일: 2008년 11월 21일 / 원고최종수정일: 2009년 01월 15일 / 원고채택일: 2009년 02월 09일

본 연구는 2007년도 전남대학교병원 임상의학연구소 학술비(CRI07022-1)지원에 의하여 연구되었음

서 구강 환경 하에서의 복합레진 수복 재료들의 장기적인 생존률은 명백히 큰 관심사이다.

타액의 효과나 임시적인 환경과 유사하게 만들기 위해 물과 함께 에탄올, 음식-자극 액체, 그리고 수산화나트륨을 섞어 조성된 습윤한 환경에서의 복합레진에 대한 이전의 연구들이 있었다¹⁷⁻²¹. 또한 Söderholm 등은 물보다 인공 타액에 복합레진이 노출되었을 때 보다 많은 이온들이 유출되며, 이전의 연구들에서 저장매체로 사용된 물의 임상적 의의에 의심을 품게 되는 것을 관찰하였다^{22,23}.

본 연구의 목적은 최근 시판되고 있는 4종의 복합레진이 3가지 액체 환경에 노출될 때 시간에 따라 필러의 용출 양상이 변하는지 알아보고 이를 비교 분석함으로써 소아치과 영역에서 복합레진 재료의 선택하는데 자료를 제공하고자 함이다.

II. 연구 재료 및 방법

본 연구에서는 Palfique Estelite LV[®] (Tokuyama Dental Corp., Tokyo, Japan), Z-350[®] (3M ESPE, USA), Ceram X duo E3[®], D3[®] (Dentsply, Konstanz, Germany) 등 4종을 사용하였다(Table 1).

1. 시편 제작

필러의 용출량을 평가하기 위해 내경 10mm, 두께 3mm인 테프론 몰드를 이용하여 각 제품마다 33개의 시편을 제작하였다. 각 재료를 테프론 몰드에 약간 넘치도록 주입하고 기포발생을 줄이기 위해 레진 기구로 응축시키거나 탐침으로 가장자리를 정리한 후 2장의 Mylar sheet와 유리판으로 압접하여 편평한 표면을 만들었다. 가시광선 중합기 (Coltolux, Coltène, USA)로 각 면마다 20초씩 광조사한 다음 Mylar sheet와 유리판을 제거한 후 각 면에 20초씩 추가 조사하였다.

증류수 내에서 초음파 세척기를 이용하여 3분간 세척하여 시

편의 이물질 제거하고 각 시편을 60℃ 오븐에서 2시간 동안 건조하였다.

2. 필러 성분 분석

분석은 EDS(Energy Dispersive Spectrometer, Hitachi, Japan)를 갖춘 주사전자현미경을 사용하였다. 스펙트럼은 양적인 분석을 위한 컴퓨터 프로그램을 사용하여 시편내의 Si, Ba 등을 분석하였다.

3. 용출 실험

각각의 시편을 5ml의 0.1N NaOH 용액, 증류수, 인공타액 (Carboxymethyl cellulose Na 9g, Glycerin 100ml, Pilocarpine HCl 4% 5ml, Physiologic saline 1000ml)이 담긴 폴리에틸렌 용기에 담고, 시편의 모든 부분이 용액과 접촉하도록 하는 한편 공기와 용액의 접촉을 차단하기 위해 용기의 뚜껑 부분을 얇은 필름 (PARAFILM, American National Can, USA)으로 완전히 밀봉하였다. 0.1N NaOH 용액에 담군 시편은 2주간, 증류수와 인공타액에 담군 시편은 5개월간 37℃ 오븐에서 보관하였다.

4. 용출된 Si, Ba 농도 측정

저장용액 내로 용출된 Si, Ba 농도를 측정하기 위하여 background의 영향이 적고, 재현성이 뛰어나며 미량 원소의 검출에 적합한 유도 결합 플라즈마 원자방출 분광기 (Inductively Coupled Plasma Atomic Emission Spectroscopy, 이하 ICP-AE, Perkin Elmer, Optima 4300 DV, USA)를 이용하여 정량 분석하였다. 0.1N NaOH 용액에 담군 시편은 2주 후에, 증류수와 인공타액에 담군 시편은 1개월 간격으로 5회에 걸쳐 정량 분석하였다.

Table 1. Materials used in this study

Brand Name	Matrix	Filler	Particle size
Estelite sigma	Bis-GMA TEGDMA	Silica Zirconia	Microhybrid
Z-350	Bis-PMA DUDMA Bis-GMA TEGDMA	ZrO ₂ SiO ₂	Nanofill
Ceram X duo E3	Methacrylate modified polysilane dimethacrylate resin	Ba/Al borosilicate glass Silica	Nanohybrid
Ceram X duo D3	Methacrylate modified polysilane dimethacrylate resin	Ba/Al borosilicate glass Siica	Nanohybrid

*Bis-GMA : Bisphenol A diglycidylether methacrylate

Bis-PMA : propoxylated BIS-GMA

DUDMA : Diurethane dimethacrylate

TEGDMA : tetraethylene glycol dimethacrylate

5. 통계학적 분석방법

SAS 9.1 프로그램을 사용하여 저장 용액에 따른 원소 용출량의 차이는 다변량 분산분석(MANOVA)을 통해 저장 기간에 따라 원소의 용출량, 저장용액의 종류와 사용된 복합레진과의 상호작용에 관한 분석은 반복측정 분산분석(repeated-measures ANOVA)을 시행하였다.

Ⅲ. 연구 성적

1. 필러 성분 분석

시편내 필러의 성분 분석 결과는 EDS에 의해 분석되었으며 시편에서 구성성분이 차지하고 있는 함량을 무게비로 나타내었다(Table 2).

2. 필러의 용출량

1) 용매에 따른 용출량

Table 3은 3가지 저장용액(0.1N NaOH, 증류수, 인공타액)에 따른 B, Ba와 Si의 용출량을 비교하여 나타내었다. 0.1N NaOH에서 14일간 저장한 경우 모든 원소에 대해 가장 많은 용출량을 보였다. Estelite는 Ba은 인공타액에서 증류수보다 더 많은 용출량을 보였으며, Si은 이와 반대되는 양상을 보였다. 나머지 제품은 Ba은 증류수에서 인공타액보다 더 많은 용출량을 보였으며, Si은 이와 반대되는 양상을 보였다. 제품에 따라서는 원소마다 용출량이 다르긴 하지만 대체적으로 Estelite와 Z-350이 E3와 D3에 비해 용출되는 양이 현저히 적었다.

Table 4는 저장용액에 따른 원소의 용출량에서 모두 유의한 평균차이를 보였다($p < 0.001$). 상대적으로 용출량이 높은 0.1N NaOH를 제거하고 분석해 보더라도 모든 저장용액, 원소, 복합레진 종류 간에 유의한 평균차이를 보였다(Table 5, $p < 0.001$).

2) 기간에 따른 용출농도

기간(30일, 60일, 90일, 120일, 150일)에 따라 증류수와 인공타액 내로 용출된 원소의 양이 Table 6과 7에 나타나 있다. 모든 원소에 대하여 Estelite와 Z-350이 E3와 D3에 비해 용출되는 양이 현저히 적었다. 또한 Si에 대해서는 Estelite는 기간이 증가함에 따라 인공타액에 저장되었을 때보다 증류수에 저장되었을 때 용출량이 더 많은 반면, Z-350은 기간이 증가함에 따라 인공타액에 저장되었을 때보다 증류수에 저장되었을 때 용출량이 더 적었다(Fig. 1 and Fig. 2).

Table 8은 저장기간에 따른 원소의 용출량과 재료의 상호관계를 나타낸 표이다. 저장 용액 간, 재료 간에 유의한 상관관계를 보였다($p < 0.0001$).

각각의 원소(Ba와 Si)에 따라 용출량, 저장용액과 재료의 상호관계를 Table 9와 Table 10에 나타내었다. 각각의 원소에 저장 용액 간, 재료 간에 유의한 상관관계를 보였다($p < 0.0001$).

Ⅳ. 총괄 및 고찰

수복재료로 사용되는 복합레진은 치아의 저작기능과 심미성을 회복할 수 있는 물리적, 화학적 성질뿐만 아니라 생물학적으로 적합성과 구강내 환경변화에 대한 내구성을 가지고 있어야 한다. Wu와 Cobb는 미세결손 부위 분석의 결과를 통해 임상적으로 마모된 복합레진의 수복물이 교합면 부위 뿐만 아니라 응력

Table 2. Weight percent of elements of fillers in 4 materials

Element Material	Si	O	Ba	B	Etc
Estelite sigma	56.4	14.5	<1.00	26	2.8
Z-350	60.1	12	<1.00	25.7	2.1
Ceram X duo E3	40.6	12.5	41.5	<1.00	5.2
Ceram X duo D3	34.7	8.9	53.3	<1.00	3

Table 3. Ba and Si leaching of composites stored in 0.1N NaOH, artificial saliva and distilled water (ppm)

Material	Storage media		0.1N NaOH (14 days)	Distilled Water (150 days)	Artificial Saliva (150 days)
	Element				
Estelite	Ba		19.237 ± 0.791	0.440 ± 0.142	1.065 ± 0.154
	Si		1324.67 ± 27.610	2.980 ± 0.022	1.818 ± 0.274
Z-350	Ba		12.280 ± 0.131	0.803 ± 0.010	0.799 ± 0.105
	Si		1474.00 ± 21.284	2.884 ± 0.122	4.921 ± 0.054
Ceram X duo E3	Ba		200.667 ± 1.222	13.853 ± 0.130	12.027 ± 0.070
	Si		334.667 ± 1.450	3.182 ± 0.020	5.896 ± 0.006
Ceram X duo D3	Ba		233.933 ± 1.850	36.720 ± 0.092	24.690 ± 0.066
	Si		235.567 ± 1.405	4.301 ± 0.005	6.077 ± 0.011

Table 4. Ba and Si leaching of composites stored in 0.1N NaOH, artificial saliva and distilled water (MANOVA result)

Source	DF	Type III SS	F value	Pr>F
storage	2	2397571.687	35169.3	<.0001
element	2	1625100.715	23838.2	<.0001
sample	3	239841.229	2345.44	<.0001
storage * element	4	3317911.551	24334.8	<.0001
element * sample	6	1073692.242	5249.9	<.0001
storage * sample	6	581907.129	2845.28	<.0001
storage * sample * element	12	2005421.586	4902.83	<.0001

Table 5. Ba and Si leaching of composites stored in artificial saliva and distilled water (MANOVA result)

Source	DF	Type III SS	F value	Pr>F
storage	1	15.959367	255.45	<.0001
element	2	966.185679	7732.61	<.0001
sample	3	1998.225527	10661.5	<.0001
storage * element	2	58.677679	469.61	<.0001
element * sample	6	1892.495481	5048.7	<.0001
storage * sample	3	42.746129	228.07	<.0001
storage * sample * element	6	121.596046	324.39	<.0001

Table 6. Ba loss(ppm) of 4 Materials exposed to distilled water or artificial saliva

Material	Days		30 days	60 days	90 days	120 days	150 days
	Media						
Estelite	Saliva		0.096 ± 0.006	0.545 ± 0.015	0.246 ± 0.005	0.834 ± 0.011	1.065 ± 0.154
	Water		0.001 ± 0.001	0.002 ± 0.002	0.003 ± 0.004	0.595 ± 0.009	0.440 ± 0.142
Z-350	Saliva		0.278 ± 0.012	0.252 ± 0.007	0.880 ± 0.008	0.816 ± 0.093	0.799 ± 0.105
	Water		0.003 ± 0.003	0.635 ± 0.007	0.636 ± 0.009	0.644 ± 0.013	0.803 ± 0.010
Ceram X duo E3	Saliva		5.683 ± 0.007	7.113 ± 0.012	9.910 ± 0.080	14.273 ± 0.021	12.027 ± 0.070
	Water		5.398 ± 0.009	4.704 ± 0.691	8.179 ± 0.099	10.547 ± 0.136	13.853 ± 0.130
Ceram X duo D3	Saliva		1.467 ± 0.032	17.063 ± 0.067	19.997 ± 0.038	20.573 ± 0.084	24.690 ± 0.066
	Water		10.877 ± 0.076	11.730 ± 0.115	20.453 ± 0.059	21.083 ± 0.076	36.720 ± 0.092

Table 7. Si loss(ppm) of 4 Materials exposed to distilled water or artificial saliva

Material	Days		30 days	60 days	90 days	120 days	150 days
	Media						
Estelite	Saliva		0.337 ± 0.004	0.831 ± 0.004	0.930 ± 0.019	1.434 ± 0.006	1.818 ± 0.274
	Water		0.723 ± 0.009	0.861 ± 0.223	2.381 ± 0.100	2.864 ± 0.041	2.980 ± 0.022
Z-350	Saliva		1.435 ± 0.005	2.292 ± 0.012	3.686 ± 0.013	4.950 ± 0.070	4.921 ± 0.054
	Water		1.073 ± 0.011	1.249 ± 0.010	2.475 ± 0.0 20	3.079 ± 0.099	2.884 ± 0.122
Ceram X duo E3	Saliva		1.217 ± 0.045	2.038 ± 0.037	2.729 ± 0.005	5.424 ± 0.173	5.896 ± 0.006
	Water		0.934 ± 0.012	0.913 ± 0.117	2.212 ± 0.008	2.828 ± 0.013	3.182 ± 0.020
Ceram X duo D3	Saliva		2.753 ± 0.032	3.989 ± 0.012	4.634 ± 0.008	5.751 ± 0.015	6.077 ± 0.011
	Water		1.192 ± 0.008	1.649 ± 0.021	3.293 ± 0.007	3.688 ± 0.19	4.301 ± 0.005

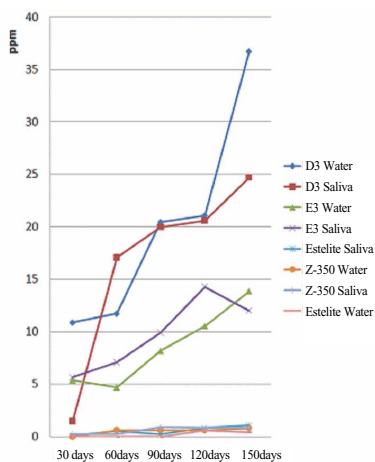


Fig 1. Ba loss(ppm) of 4 Materials exposed to distilled water or artificial saliva.

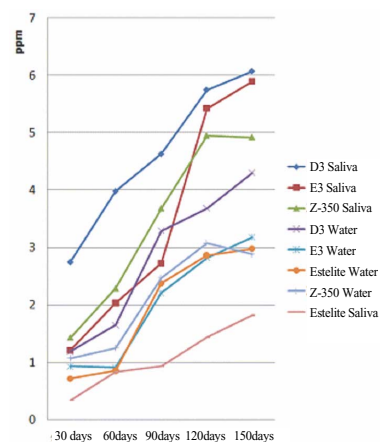


Fig 2. Si loss(ppm) of 4 Materials exposed to distilled water or artificial saliva.

Table 8. Monthly Ba and Si leaching results (repeated-measures ANOVA)

Source	DF	Type III SS	F Value	Pr>F
storage	1	12.2121	1171.69	<.0001
sample	3	3832.46	122568	<.0001
element	2	1737.9	83371.2	<.0001
storage*sample	3	56.7797	1815.91	<.0001
storage*element	2	30.367	1456.78	<.0001
sample*element	6	3363.79	53789.7	<.0001
storage*sample*element	6	109.854	1756.65	<.0001
Error	48	0.50029		

Source	DF	Type III SS	F Value	Pr>F	Adj Pr > F	
					G-G*	H-F**
period	4	852.299	28046.7	<.0001	<.0001	<.0001
period*storage	4	57.5383	1893.42	<.0001	<.0001	<.0001
period*sample	12	617.695	6775.51	<.0001	<.0001	<.0001
period*element	8	326.14	5366.15	<.0001	<.0001	<.0001
period*storage*sample	12	104.751	1149.02	<.0001	<.0001	<.0001
period*storage*element	8	73.1045	1202.83	<.0001	<.0001	<.0001
period*sample*element	24	715.183	3922.43	<.0001	<.0001	<.0001
period*storage*sample*element	24	133.305	731.11	<.0001	<.0001	<.0001
Error(period)	192	1.45865				

* Greenhouse-Geisser Epsilon : 0.4447

** Huynh-Feldt Epsilon : 0.6819

Table 9. Monthly Ba leaching (repeated-measures ANOVA) results

Source	DF	Type III SS	F Value	Pr>F
storage	1	5.67371	277.88	<.0001
sample	3	6634.28	108308	<.0001
storage*sample	3	94.7234	1546.41	<.0001
Error	16	0.32669		

Source	DF	Type III SS	F Value	Pr>F	Adj Pr > F	
					G-G*	H-F**
period	4	976.794	15934.2	<.0001	<.0001	<.0001
period*storage	4	118.272	1929.34	<.0001	<.0001	<.0001
period*sample	12	1276.01	6938.41	<.0001	<.0001	<.0001
period*storage*sample	12	215.449	1171.52	<.0001	<.0001	<.0001
Error(ppm)	64	0.98083				

* Greenhouse-Geisser Epsilon : 0.3438

** Huynh-Feldt Epsilon : 0.53

Table 10. Monthly Si leaching (repeated-measures ANOVA) results

Source	DF	Type III SS	F Value	Pr>F
storage	1	25.3387	3764.45	<.0001
sample	3	74.4188	3685.36	<.0001
storage*sample	3	33.8367	1675.66	<.0001
Error	16	0.1077		

Source	DF	Type III SS	F Value	Pr>F	Adj Pr > F	
					G-G*	H-F**
ppm	4	143.909	6858.59	<.0001	<.0001	<.0001
ppm*storage	4	4.95168	235.99	<.0001	<.0001	<.0001
ppm*sample	12	9.20761	146.28	<.0001	<.0001	<.0001
ppm*storage*sample	12	9.1111	144.74	<.0001	<.0001	<.0001
Error(ppm)	64	0.33572				

* Greenhouse-Geisser Epsilon : 0.6893

** Huynh-Feldt Epsilon : 1.2114

이 발생하는 부위에서도 손상을 받은 부위가 나타남을 보고하였고 이는 이러한 수복물질의 분해에 생체역학적으로 화학적인 환경이 영향을 미친다고 하였다. 또한 재료의 높은 용해성은 접착부분의 긴밀성과 심미성의 상실로 인해 물리적 성질변화로 수복물의 실패로 이어진다^{24,25}.

복합레진이 구강내의 환경에 노출될 경우, 수분을 흡수하여 수산기를 형성하고 국소적으로 pH가 상승되어 기질과 필러 입자의 결합부 분해가 촉진된다²⁵. 이러한 필러에 대한 수분의 영향은 기질과 필러 사이에 미세간격을 유발하며 굴절율을 변화시켜 불투명하게 만들고 심미적 성질에도 영향을 준다^{13,26,27}. 이러한 수분에 의한 손상은 구강내에 가장 근접하고 있는 수복물의 가장 바깥부분에서 가장 강력한 것으로 생각되며 장기적으로 보았을 때 부드럽고 다공성인 표면하 분해층을 명확히 형성하게 되는 것이다^{28,29}.

구강 내 습기는 가수분해와 효소에 의한 분해로 인해 복합레진 재료의 화학적 분해와 침식을 일으킨다³⁰. 타액 내 효소는 레진 기질의 화학적 분해 과정에 참여한다^{30,31}. 또한 물의 존재는 복합레진 재료의 분해에 상당히 중요한 요소이다. 레진 기질 내로 물의 흡수는 층 사이에 있는 filler를 분해시키고 탈락시키게 된다^{16,32}. 그 결과는 기계적 성질을 떨어뜨리는 것이다⁵. 누출 과정만큼이나 분해 과정도 시간에 의존한다^{16,33}. 그러나 화학적 분해의 실험실적 연구에서 수분에 의한 분해는 1년 이상이 경과되어도 인지하기 어려울 수 있다³⁴. 특히 물이나 인공타액에서 또한 이러한 과정이 지연될 수 있으며 낮은 pH의 매체에서는 심지어 더 늦어질 수도 있다^{22,35-39}. 그러므로 적절한 구강매체의 선택은 중요한데, 이전의 연구에서 수복물 내의 국소적인 pH가 상승되었을 경우 실란커플링제와 필러 입자의 분해가 촉진되는 것으로 보고되었고⁴⁰, 이러한 pH는 수복물이 수분을 흡수하게 되면 수산기를 형성하여 국소적으로 pH가 상승된다고 하였다⁴¹⁻⁴⁵. Sarkar에 의하면 NaOH는 다량체 기질에 영향을 주지 않고 필러 입자를 분해하며, in vivo에서 보여지는 것과 유사한 분해를 보인다고 하였다. 또한 필러가 물이나 인공타액에서 용해되는 것이 매우 느리고 복합레진이 구강 환경 내에서 분해되는 것은 수산화 이온 때문이므로 본 연구에서 사용된 0.1N NaOH 용액은 물이나 인공타액보다 106배의 수산화 이온이 더 많아 좀더 강한 매체를 제공해 줄 수 있다^{21,46-48}. 또한 이 용액은 증류수인 경우 같은 정도의 분해를 유발하는데 있어 약 6개월에서 12개월 이상의 기간이 소모되는 등의 시간적인 문제를 해결할 수 있으며, 물과 인공타액에 비해서 훨씬 더 침투적인 매체가 될 수 있어 효율성이 크다고 할 수 있다.

0.1N NaOH 용액내로 용출된 Si 농도는 Z-350이 가장 높았다. Si는 SiO₂나 glass silicate의 성분이므로 용출된 Si는 필러 입자 분해의 증거이기 때문에 함량이 높은 재료에서 용출된 것으로 보인다²⁰. 그러나 인공타액 조건하에서는 Z-350이 가장 낮은 용출량을 보였다. 또한 저장용액에 따라, 사용된 복합레진 종류에 따라, 용출된 원소에 대해 모두 유의한 평균차이(p<.0001)를 보임을 확인할 수 있었다. 다른 연구 결과와 유사하게 본 연구에서는 원소의 용출량이 증류수에서보다 인공타액

에서 더 많은 용출량을 보였다. 이는 구강 환경이 더 많은 필러 입자의 분해를 야기한다는 것으로 생각된다. 하지만 본 연구에서 사용된 인공타액의 조성은 완벽하게 구강내 환경을 재현해 내지 못하므로 단정하기는 어렵다^{22,49}.

Ba의 용출량은 시간의 증가에 따라 증가량이 다양한 반면, 인공타액에 저장된 경우 Si의 용출량은 증가량이 대체적으로 120일까지는 급격히 증가하다가 서서히 증가량이 작아지는 양상을 보였다(Fig. 1 and 2). 이는 Söderholm 등의 연구결과와 유사하며²², Charles가 제안한 바와 같이 포화반응에 도달하기까지 어느 정도의 OH농도가 필요함을 암시하고 있다⁵⁰. 또한 각 원소의 저장 기간의 증가에 따른 용출량은 샘플, 저장 용액과 유의한 상호작용을 나타내었다(p<.0001). 이 결과를 통해 구강내에 잔존하는 시간이 길어질수록 복합레진에서 용출되는 양도 증가할 것이라고 예상할 수 있다.

본 연구를 통해 나노필러를 함유한 복합레진이 수분환경에서 필러 입자들의 지속적인 용출이 일어남을 확인할 수 있었다. 하지만 이는 다양한 구강환경을 재현해내지 못했고 용출량만으로는 복합레진의 화학적 분해와 약화된 정도를 판단하는 데에는 한계가 있다. 따라서 다양하게 구강내 환경을 재현하고, 장기간 수분환경에 노출되었을 때 필러의 용출량 뿐만 아니라 기계적 분해와 마모에 대한 더 많은 연구가 필요하다고 생각된다.

V. 결 론

본 연구는 최근 시판되고 있는 4종의 복합레진 (Palfique Estelite sigma[®] (Tokuyama Dental Corp., Tokyo, Japan), Z-350[®] (3M ESPE, USA), Ceram X duo E3[®], Ceram X duo D3[®] (Dentsply, Konstanz, Germany))이 3가지 액체 환경에 노출될 때 시간에 따라 필러의 용출 양상이 변하는지 알아보고 이를 비교 분석하고자 하였다.

1. 0.1N NaOH에서 필러의 용출량은 모든 시편에 대해서 유의하게 높았다(p<.0.001).
2. 증류수에 저장하였을 때, Si 용출량은 Z-350가 가장 적고, 인공 타액에 저장하였을 때, Si 용출량은 Estelite에서 가장 적었다.
3. 저장용액에 따른 원소의 용출량에서 모두 유의한 평균차이를 보였다(p<.0.001).
4. 인공타액에 저장된 시편이 증류수에 저장된 시편보다 시간이 증가할수록 Ba와 Si의 용출량이 더 많았다.
5. 저장기간에 따른 필러의 용출량은 저장 용액 간, 재료 간에 유의한 상관관계를 보였다(p<.0001).

이상을 통해 나노필러를 함유한 복합레진이 수분환경에 노출되었을 때 필러 입자들의 지속적인 용출이 일어남을 확인할 수 있었다.

참고문헌

1. Proffit WR, Fields HW, Nixon WL : Occlusal forces

- in normal- and long-face adults. *J Dent Res*, 62:566-570, 1983.
2. Fields HW, Proffit WR, Case JC, *et al.* : Variables affecting measurements of vertical occlusal force. *J Dent Res*, 65:135-138, 1986.
 3. Leinfelder KF, Sluder TB, Sockwell CL, *et al.* : Clinical evaluation of composite resins as anterior and posterior restorative materials. *J Prosthet Dent*, 33:407-416, 1975.
 4. 양규호, 정희경, 최남기 등 : 광중합형 복합레진의 화학적 분해와 마모에 관한 연구. *대한소아치과학회*, 34:273-284, 2007.
 5. Mjor IA : Placement and replacement of restorations. *Oper Dent*, 6:49-54, 1981.
 6. Qvist V, Thylstrup A, Mjör IA : Restorative treatment pattern and longevity of resin restorations in Denmark. *Acta Odontol Scand*, 44:351-356, 1986.
 7. Ferracane JL : In vivo evaluation of composite resins. Structure-property relationships. Development of assessment criteria. *Trans Acad Dent Mater*, 2:6-35, 1989.
 8. Oysaed H, Ruyter IE : Composites for use in posterior teeth: mechanical properties tested under dry and wet conditions. *J Biomed Mater Res*, 20:261-271, 1986.
 9. Calais JG, Söderholm KJ : Influence of filler type and water exposure on flexural strength of experimental composite resins. *J Dent Res*, 67:836-840, 1988.
 10. Mohsen NM, Craig RG : Hydrolytic stability of silanated zirconia-silica-urethane dimethacrylate composites. *J Oral Rehabil*, 22:213-220, 1995.
 11. Söderholm KJ : Degradation of glass filler in experimental composites. *J Dent Res*, 60:1867-1875, 1981.
 12. de Gee AJ, Pallav P, Werner A, *et al.* : Annealing as a mechanism of increasing wear resistance of composites. *Dent Mater*, 6:266-70, 1990.
 13. Söderholm KJ : Leaking of fillers in dental composites. *J Dent Res*, 62:126-30, 1983.
 14. Ferracane JL : Elution of leachable components from composites. *J Oral Rehabil*, 21:441-452, 1994.
 15. Peumans M, Van Meerbeek B, Lambrechts P, *et al.* : The influence of direct composite additions for the correction of tooth form and/or position on periodontal health. A retrospective study. *J Periodontol*, 69:422-427, 1998.
 16. Söderholm KJ, Zigan M, Ragan M, *et al.* : Hydrolytic degradation of dental composites. *J Dent Res*, 63:1248-1254, 1984.
 17. Ferracane JL, Berge HX : Fracture toughness of experimental dental composites aged in ethanol. *J Dent Res*, 74:1418-1423, 1995.
 18. McKinney JE, Wu W : Chemical softening and wear of dental composites. *J Dent Res*, 64:1326-1331, 1985.
 19. Krishna VK, Yamuna V : Aging studies of a radiopaque light-cured dental composite in food stimulating liquids. *J Appl Polym Sci*, 69:1153-8, 1998.
 20. Sarkar NK, Karmaker A, Prasad A *et al.* : Simulation of vivo degradation of dental composites. *J Mater Sci Lett*, 18:1749-52, 1999.
 21. Sarkar NK : Internal corrosion in dental composite wear. *J Biomed Mater Res*, 53:371-380, 2000.
 22. Söderholm KJ, Mukherjee R, Longmate J : Filler leachability of composites stored in distilled water or artificial saliva. *J Dent Res*, 75:1692-1699, 1996.
 23. Darvell BW : The development of an artificial saliva for in vitro amalgam corrosion studies. *J Oral Rehabil*, 5:41-49, 1978.
 24. Wu W, Cobb EN : A silver staining technique for investigating wear of restorative dental composites. *J Biomed Mater Res*, 15:343-348, 1981.
 25. Bapna MS, Mueller HJ : Relative solubilities of hybrid ionomer and compomers by acid impingement. *J Oral Rehabil* 26:786-790, 1999.
 26. Kalachandra S : Influence of fillers on the water sorption of composites. *Dent Mater* 5:283-288, 1989.
 27. Kalachandra S, Wilson TW : Water sorption and mechanical properties of light-cured proprietary composite restorative materials. *Biomaterials*, 13:105-109, 1992.
 28. Wu W, Toth EE, Moffa JF, *et al.* : Subsurface damage layer of in vivo worn dental composite restorations. *J Dent Res*, 63:675-680, 1984.
 29. Mair LH : Staining of in vivo subsurface degradation in dental composites with silver nitrate. *J Dent Res*, 70:215-220, 1991.
 30. Larsen IB, Munksgaard EC : Effect of human saliva on surface degradation of composite resins. *Scand J Dent Res*, 99:254-261, 1991.
 31. Munksgaard EC, Freund M : Enzymatic hydrolysis of (di) methacrylates and their polymers. *Scand J Dent Res*, 98:261-267, 1990.
 32. Braden M : Water absorption characteristics of den-

- tal microfine composite filling materials. II Experimental materials. *Biomaterials*, 5:373-375, 1984.
33. Örtengren U, Wellendorf H, Karlsson S, *et al.* : Sorption, solubility and identification of substances released from composite materials in an aqueous environment. *J Oral Rehab* (Accepted for publication), 2000.
 34. Roulet JF : Degradation of dental polymers. Switzerland:Kraeger, 161-214, 1987.
 35. Zui S, Arai K : A study of visible light-cured composite resins-mechanical properties. *J Soc Dent Mat Dev*, 5:601-615, 1986.
 36. Pilliar RM, Vowles R, Williams DF : The effect of environmental aging on the fracture toughness of dental composites. *J Dent Res*, 66:722-726, 1987.
 37. Ferracane JL, Hopkin JK, Condon JR : Properties of heat-treated composites after aging in water. *Dent Mater*, 11:354-358, 1995.
 38. de Gee AJ, Wendt SL, Werner A, *et al.* : Influence of enzymes and plaque acids on in vitro wear of dental composites. *Biomaterials*, 17:1327-1332, 1996.
 39. Kondo S, Ohkawa S, Hanawa T, *et al.* : Environmental durability of composite resins in acidic and alkaline solutions. *J Dent Res*, 68:447-992, 1989.
 40. Ferracane JL, Condon JR : Rate of elution of leachable components from composite. *Dent Mater*, 6:282-287, 1990.
 41. Karabela MM, Sideridou ID. : Effect of the structure of silane coupling agent on sorption characteristics of solvents by dental resin-nanocomposites. *Dent Mater*, 24:1631-1639, 2008.
 42. Xia Y, Zhang F, Xie H, *et al.* : Nanoparticle-reinforced resin-based dental composites. *J Dent*, 36:450-455, 2008.
 43. Rodrigues SA Jr, Scherrer SS, Ferracane JL, *et al.* : Microstructural characterization and fracture behavior of a microhybrid and a nanofill composite. *Dent Mater*, 24:1281-1288, 2008.
 44. Yesil ZD, Alapati S, Johnston W, *et al.* : Evaluation of the wear resistance of new nanocomposite resin restorative materials. *J Prosthet Dent*, 99:435-443, 2008.
 45. Ernst CP, Brandenbusch M, Meyer G, *et al.* : Two-year clinical performance of a nanofiller vs a fine-particle hybrid resin composite. *Clin Oral Investig*, 10:119-125, 2006.
 46. Sarkar NK, Xu X, Li L, *et al.* : Hydrolytic degradation of dental composites. *J Dent Res spec.*, #855, 1996.
 47. Yap AU, Ong LF, Teoh SH, *et al.* : Comparative wear ranking of dental restoratives with the BIOMAT wear simulator. *J Oral Rehabil*, 26:228-235, 1999.
 48. 박미란, 양규호, 최남기 등 : 콤포머의 NaOH 용액 내에서의 화학적 분해. *대한소아치과학회지*, 31:144-152, 2004.
 49. Söderholm KJ, Yang MC, Garcea I. : Filler particle leachability of experimental dental composites. *Eur J Oral Sci*, 108:555-560, 2000.
 50. Charles RJ. Static fatigue of glass I. *J Appl Phys*, 29:1549-1553, 1958.

Abstract

FILLER LEACHING FROM NANOFILLER-CONTAINED COMPOSITE RESIN IN VARIOUS MEDIA

Kyu-ho Yang, Su-Kyung Heo, Nam-ki Choi, Seon-mi Kim

*Department of Pediatric Dentistry, Chonnam National University School of Dentistry,
Dental Research Institute and Second stage of BK21*

The objective of this study was to measure the leaching of filler (Si, Ba) from nanofiller-contained composites (Palfique Estelite sigma[®] (Tokuyama Dental Corp., Tokyo, Japan), Z-350[®] (3M ESPE, USA), Ceram X duo E3[®], D3[®] (Dentsply, Konstanz, Germany)) under different conditions.

The samples used for the study of leachable components were made by insertion of the material into a circular mold, 10 mm in diameter and 3.0 mm high. Each specimen was placed in a disposable polystyrene vial containing 5 mL of distilled water, artificial saliva or 0.1N NaOH and kept in an oven at 37°C. ; water and artificial saliva - 150 days, 0.1N NaOH - 15days. Inductively coupled plasma atomic emission spectroscopy (ICP-AES) was used to determine the amount of Si and Ba in the test solutions.

1. Filler leaching was significantly great in 0.1N NaOH among all samples($p < .0.001$).
2. When samples were stored in the distilled water, Estelite showed the lowest amount of Si leaching. When samples were stored in the artificial saliva, Z-350 showed the lowest amount of Si leaching.
3. There were significant differences in filler leaching between 3 storage medias and composite resins($p < .0.001$).
4. Si and Ba leaching occurred in greater proportion when samples were stored in the artificial saliva than distilled water.
5. There were significant interactions in monthly filler leaching between leaching in artificial saliva and in distilled water, as well as the interaction between storage medium and filler($p < .0001$).

These results indicate that a continuous filler leaching of nanofiller-contained composite resins was in storing aqueous solutions under over time.

Key words : Composite resin, Nanofiller, 0.1N NaOH, Artificial saliva, Distilled water, Filler leaching