단일용기 상아질 접착제 처리 후 레진-상아질 경계면에 대한 투과전자현미경적 연구

연세대학교 대학원

치의학과

양 동 운

단일용기 상아질 접착제 처리 후 레진-상아질 경계면에 대한 투과전자현미경적 연구

지도 이 찬 영 교수

이 논문을 박사 학위논문으로 제출함

1999년 12월 일

연세대학교 대학원

치의학과

양 동 운

양동운의 박사 학위논문을 인준함

심사위원 _____ 인

심사위원 _____ 인

심사위원 _____ 인

심사위원 _____ 인

심사위원 _____ 인

연세대학교 대학원

1999년 12월 일

감사의 글

후학들을 가르치는 즐거움에 살다 가신 故 朴東洙 교수님 영전에 삼가 이 논문을 바칩니다.

하나의 소중한 결실을 맺게되어 한없이 기쁘고 하나님께 감사와 찬양을 올립니다.

이 논문이 완성되기까지 시종 다함이 없는 관심과 넘치는 열정으로 지도해 주신 이찬영 교수님께 진심으로 감사드리며, 항상 따뜻한 격려와 조언을 해주신 이승종 교수님, 노병덕 교수님, 박성호 교수님, 금기연 교수님께도 감사의 마음을 전합니다. 아울러 본 연구가 진행되는 동안 많은 관심을 보인 정일영 교수님, 박철연 선생님, 김은영 선생님께도 감사드리며, 시편제작과 투과전자현미경 관찰에 많은 도움을 주신 전자현미경실 연구원 여러분과 보존학교실 의국원 여러분께도 감사드립니다.

그리고 지금의 제가 있기까지 항상 기도와 사랑으로 이끌어주신 부모님과 가족들에게 머리 숙여 감사드리며, 특히 힘에 겹고 지쳐있을 때 곁에서 기도와 사랑으로 새 힘을 불어 넣어준 나의 사랑스러운 아내 승연과 아직은 조금 서투른 말로 아빠를 격려해 주며 무한한 가능성을 느끼게 해준 우리의 보배 준호, 재호에게 형언할 수 없는 고마운 마음을 전하며 이 기쁨도 함께 하고 싶습니다.

1999년 12월

저자 씀.

목 차

도표 및 사진부도 목차 ····· vi
국문요약 ····· vii

Ⅰ. 서 론 ····· 1

Ⅱ. 실험재료 및 실험방법 ····· 5
가. 실험재료 ····· 5
나. 실험방법 ····· 5

Ⅲ. 실험성적 ····· 10

Ⅳ. 총괄 및 고찰 ····· 13

Ⅴ. 결 론 ····· 19

참고문헌 ····· 21
사진부도 설명 ····· 28
사진부도 ····· 30
영문요약 ····· 34

도표 및 사진부도 목차

Table 1. Chemical components of the dentin bonding systems used in this study ····· 6

Fig. 1 & 2. Transmission electron microscopic view of resin-dentin interdiffusion zone of SBMP group ····· 30

Fig. 3 & 4. Transmission electron microscopic view of resin-dentin interdiffusion zone of ONE-STEP® group ····· 30

Fig. 5 & 6. Transmission electron microscopic view of resin-dentin interdiffusion zone of Prime & Bond® 2.1 group ··· 31

Fig. 7 & 8. Transmission electron microscopic view of resin-dentin interdiffusion zone of Single Bond group ····· 31

Fig. 9 & 10. Transmission electron microscopic view of resin-dentin interdiffusion zone of Syntac® SC™ group ····· 32

Fig. 11 & 12. Transmission electron microscopic view of resin-dentin interdiffusion zone of TOKUSO MAC-BOND II group ····· 32

Fig. 13 & 14. Transmission electron microscopic view of resin-dentin interdiffusion zone of D-Liner Dual PLUS group ··· 33

Fig. 15 & 16. Transmission electron microscopic view of resin-dentin interdiffusion zone of ONE COAT BOND group ··· 33

국문요약

단일용기 상아질 접착제 처리 후 레진-상아질 경계면에 대한 투과전자현미경적 연구

복합레진을 상아질에 결합시켜 주는 상아질 접착제는 개선을 거듭하여 최근에는 임상술식을 단순화하고 치료시간을 줄이기 위해서 단일용기 상아질 접착제가 도입되었다. 단일용기 상아질 접착제의 상아질에 대한 결합력을 측정하는 연구는 많이 시행되었으나, 단일용기 상아질 접착제를 처리한 후 레진과 상아질 사이의 경계면에 대한 미세형태학적 연구는 미미한 상태이다.

이에 본 연구에서는 최근 시판되고 있는 여러 가지 단일용기 상아질 접착제의 상아질에 대한 결합양상을 평가하고자 레진과 상아질 사이의 경계면을 투과전자현미경을 이용하여 관찰하였다. 발거한 지 한 달 이내의 치아우식증이 없는 제 3 대구치를 백아-법랑 경계부 상방 1㎜에서 절단하여 치근부위는 버리고 교합면측 법랑질 부위에 2차로 평행되게 절제하여 1㎜ 두께의 상아질 원판을 제작하였다. 7개의 단일용기 상아질 접착제와 1개의 복합용기 상아질 접착제를 제조회사의 지시대로 상아질 원판에 도포한 후 투과전자현미경 관찰을 통하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

1. 모든 실험군에서 교원섬유의 cross banding이 뚜렷하게 관찰되었고, 상아질 접착제와 상아질 사이에는 긴밀한 결합을 갖는 것이 관찰되었다.

2. 혼성층은 ONE-STEP®, Prime & Bond®2.1, Syntac® SC™, MAC-BOND Ⅱ를 도포한 실험군에서 명확하게 관찰되었으나, Single Bond, D-Liner Dual PLUS, ONE COAT BOND를 도포한 실험군에서는 관찰되지 않았다.

3. 혼성층 내의 electron-density는 MAC-BOND Ⅱ, Prime & Bond® 2.1을 도포한 실험군에서 균일하였고, ONE-STEP®을 도포한 실험군에서는 균일하지 않았다.

4. Single Bond, Syntac® SC™, ONE COAT BOND를 도포한 실험군에서는 레진-상아질 경계면의 최상층에 electron-dense한 amorphous phase가 특징적으로 관찰되었다.

이상에서 상아질 접착제와 상아질과의 경계면은 상아질 접착제 각각의 화학성분과 결합시 상아질의 조건에 따라 다양한 형태로 관찰되었으나 긴밀한 결합을 보였으므로 단일용기 상아질 접착제가 임상적으로 유용한 것으로 사료된다.

핵심되는 말 : 단일용기 상아질 접착제, 레진-상아질 경계부, 혼성층, 투과전자현미경

단일용기 상아질 접착제 처리 후 레진-상아질 경계면에 대한 투과전자현미경적 연구

연세대학교 대학원 치의학과
(지도 이 찬 영 교수)
양 동 윤

I. 서 론

법랑질에 대한 치과용 복합레진의 성공적인 결합은 확립된 지 오래되었으나 상아질에 대해서는 아직까지 여러가지 결합방식이 거론되고 있고 실험방법에 따라 다른 결과들이 보고되고 있다[20,47]. 상아질에 대한 복합레진의 결합이 법랑질과는 달리 많은 문제점을 나타내는 원인으로는 상아질의 해부, 조직학적 특징을 들 수 있다. 상아질은 총 질량의 70%가 무기질, 18%가 교원섬유(collagen fiber)등의 유기질, 12%가 물로 구성되어 있어서[17] 약 95% 이상이 무기질로 되어있는 법랑질과는 그 구성에 있어서 차이를 보이고 있으며 수산화인회석 결정(hydroxyapatite crystal)이 법랑질에서는 규칙적인 배열을 갖는데 비해 상아질에서는 유기기질(organic matrix)에 불규칙하게 배열되어 있다[47]. 또한 상아질에는 상아세관이 존재하며 상아세관에는 상아세관액이 상존하여 치아외부의 변화에 대하여 항상 유동적으로 움직이고 있는 유기적인 조직이다.

Buonocore가[2] 법랑질에 대한 산부식법을 발표한 이래로 같은 개념으로 상아질에 대한 산부식과 methacrylate 계통의 소수성 단량체(hydrophobic monomer)를 이용하여 상아질에 대한 결합력을 증가시키려는 시도가 있었으나 원하는 결과를 얻지는 못하였다[1,3,14,23]. 그 원인으로는 위에서 설명한 상아질의 해부, 조직학적 문제점 때문인 것으로 생각된다. 즉 상아질 자체는 법랑질에 비해 수분이 풍부한 조

직인데 이에 대한 고려없이 소수성의 단량체를 사용한 것이 문제점으로 생각된다[35,57].

이와같이 상아질에 대한 산부식법을 통하여 물리적인 결합력을 증가시키려는 시도가 실패하자 상아질에 대한 화학적인 결합을 통하여 결합력을 증가시키려는 시도가 있었으나 적절한 결합력을 얻을 수 없었고 완전한 화학결합이 일어나기에는 어려운 점들이 있었다. 두 물질간의 긴밀한 접촉이 모든 화학반응의 필요조건인데 와동형성 중에 생기는 도말층이 레진과 상아질간의 긴밀한 접촉을 방해하였다[27].

레진-상아질 경계부위에 대한 여러 가지 화학분석법에 따르면 요즘 사용되는 상아질 접착제의 주된 결합기전은 화학적인 결합보다는 미세기계적 결합(micromechanical interlocking)에 기초를 둔다고 여겨지고 있다[7,10,22,31,37,46,60-62]. 여기에서 기본적으로 사용되는 술식이 법랑질과 상아질을 동시에 산부식시키는 'total-etch' technique[16]과 상아질 표면이 젖어있는 상태로 접착강화제(primer)와 접착제(adhesive resin)를 적용시키는 습윤접착법(wet bonding technique)[24]이다. 1979년에 Fusayama등이[16] 상아질을 산부식시킴으로써 결합력이 증가되었다고 보고한 이래, 산부식제가 치수염증반응을 야기하는가 하는 문제를 가지고 오랫동안 논란이 있어왔으나[29,40,45] 치수염증반응을 야기하는 것은 산부식제 자체가 아니라 수복물과 치아사이의 변연누출(marginal leakage)이 원인인 것으로 규명되었다[6,15,28,44].

상아질에 대한 탈회(decalcification) 깊이는 산부식제의 pH, 농도, 점도, 적용시간 등 여러 가지 요인에 의해서 좌우된다[36,60]. 산부식제로 상아질을 탈회시킨 후 interfibrillar microporosity를 갖는 교원섬유의 망상구조(collagen fibril network)가 노출되면 노출된 교원섬유 기질(collagen matrix)에 접착제가 침투(impregnation)해서 레진-상아질 사이의 확산대(resin-dentin interdiffusion zone) 또는 혼성층(hybrid layer)이 생긴다고 Nakabayashi등이[31] 처음 기술한 이후 혼성층이 레진과 상아질 사이의 결합에 끼치는 영향에 대한 연구가 많이 진행되었다[32,41-43,58,59,63].

레진과 상아질 사이의 경계면 관찰은 주사전자현미경[5,11,22,38,39,50]이나 투과전자현미경[21,32,33,52,55,61]을 이용할 수 있다. 주사전자현미경을 이용한 관찰은 탈회의 깊

이 정도는 알 수 있으나 상아질 표면으로 레진이 침투해서 혼성층을 형성하였는지를 결정하는 것은 적절하지가 않다[42]. 이런 단점을 보완해주기 위해서 투과전자현미경을 이용하거나, 주사투과전자현미경과 energy-dispersive spectroscopy를 함께 이용하거나[8], fluorescence confocal microscopy를 이용해서[67] 레진과 상아질 사이의 경계면을 관찰할 수 있다.

투과전자현미경을 이용하여 레진과 상아질 사이의 경계면을 관찰한 연구에서 Van Meerbeek등은[61] Clearfil Liner Bond System(Kuraray, Osaka, Japan)을 이용한 실험에서 혼성층 내에 세가지 층이 존재한다고 하였으나, Tay등은[51] 상아질 접착제를 적용시키기 전에 상아질이 너무 건조된 경우에 그러한 층이 형성되고 습윤된 상태에서 적용시키면 혼성층 내에서 어떤 층도 구분되어서 관찰되지 않는다고 하였다.

탈회된 교원섬유 망상구조에 레진이 불완전하게 침투되면 그 부분이 시간이 지남에 따라 붕괴되어 수복물의 실패를 야기할 수 있으므로[33] 혼성층의 두께보다는 hybridization의 질(quality)이 상아질면을 산 처리하는 상아질 접착제의 성공에 더욱 중요한 요소로 인식되고 있다[68].

최근에 Gwinnett등은[19] 교원섬유층 내로 레진이 침투되는 것이 레진과 상아질 간의 결합력에 어느 정도 영향이 있는지 연구한 결과 결합력에는 영향을 끼치지 않는다고 보고하였으며, Uno등은[58] 레진이 중합될 때 생기는 응력을 혼성층이 흡수해 주는 역할을 한다고 하였다.

이전까지 상아질 접착제가 산부식제, 접착강화제, 접착제의 복합용기 체계로 되어있음으로 인해서 접착과정이 복잡하고 술자의 숙련도에 따라 치료결과에 많은 차이를 보였으므로, 최근 접착과정을 단순화하고 치료단계를 줄이기 위해서 단일용기 상아질 접착제(one bottle system)가 도입되었고, 이 상아질 접착제는 법랑질과 상아질에 total etching을 시행한 후 self-priming, light curing bonding agent를 법랑질과 상아질에 직접 도포하는 방법이다. 이 단일용기 상아질 접착제의 상아질에 대한 결합력을 측정하는 연구는 많이 시행되어서[9,13,26,48,49,56] 상아질과의 결합력이 어느정도는 만족할만한 수준인 것으로 나타났으나, 접착강화제와 접착제 또는 산부식제와 접착강화제가 한 용기에 포함되어 있어 상아질 접착제의 침투깊

이가 감소해서 adhesion과 sealing capacity를 감소시킬 가능성을 배제할 수 없는 상태이다. 그러나, 단일용기 상아질 접착제를 처리한 후 레진과 상아질 사이의 경계면에 대한 미세형태학적 연구는 미미한 상태이다.

이에 본 연구에서는 현재 시판되고 있는 7종류의 단일용기 상아질 접착제를 상아질에 결합시킨 후 레진-상아질 경계부위를 투과전자현미경으로 관찰함으로써 각각의 결합양상과 혼성층 내의 구조에 대해 다소의 지견을 얻었기에 이에 보고하는 바이다.

Ⅱ. 실험재료 및 실험방법

가. 실험재료

치아우식증이 없는 제 3대구치를 발거한 후 0.5% chloramine T 용액에 4℃에서 보관하였다가 한 달 이내에 실험하였다.

대조군으로는 복합용기 상아질 접착제인 Scotchbond™ Multi-Purpose (3M Dental Products)를 이용하였고, 실험군으로는 단일용기 상아질 접착제인 ONE-STEP® (Bisco), Prime & Bond® 2.1 (DENTSPLY), Single Bond(3M Dental Products), Syntac® Single-Component™ (VIVADENT), TOKUSO MAC-BOND Ⅱ (Tokuyama), D-Liner Dual PLUS (Sun Medical), ONE COAT BOND (Coltène®)를 이용하였다(Table 1). 상아질 원판(dentin disc)을 제작하는 low speed diamond saw로는 Minitome (Struers, Denmark)을 이용하였고, 상아질 접착제 처리 후 광중합시키는 광원으로는 Optilux (Demetron)를 이용하였다. 투과전자현미경 관찰을 위한 초박절편 제작에는 ULTRACUT ultramicrotome (LEICA)을 사용하였고, 투과전자현미경은 Philips CM-10 (Philips, Eindhoven, The Netherlands)을 이용하여 관찰하였다.

나. 실험방법

실험에 이용할 치아를 수주하에 Minitome(Struers, Denmark)을 이용하여 백아-법랑 경계부 상방 1㎜에서 절단하여 치근 부위를 버리고 교합면측 법랑질 부위에 2차로 평행되게 절제하여 1㎜ 두께의 상아질 원판을 제작하였다. 상아질 원판 상에는 치수각이 노출되거나 법랑질 잔사가 남지않도록 하였다. 상아질 접착제를 결합시킬 상아질면에 균일한 도말층을 형성해주기 위해서 silicon carbide sandpaper로 60초 동안 wet-sanding 하였다[34].

상아질 원판은 무작위로 각 군당 5개씩 7개의 실험군과 1개의 대조군으로 나누고, 각 실험군은 제조회사의 지시대로 상아질 접착제를 상아질면에 도포하였다.

Table 1. Chemical components of the dentin bonding systems used in this study

Adhesive	Etchant(Conditioner)	Primer/Bonding Composition
ONE-STEP® (Bisco)	32% phosphoric acid, benzalkonium	BPDM, Bis-GMA, HEMA, NTG-GMA, UDMA, acetone
Prime & Bond® 2.1 (DENTSPLY)	36% phosphoric acid	Dimethacrylate resins, PENTA, Cetylamine, hydrofluoride, acetone
Single Bond (3M)	35% phosphoric acid	Bis-GMA, Dimethacrylate, HEMA, polyalkenoic acid copolymer, GDMA, ethanol, water
Syntac® SC™ (VIVADENT)	37% phosphoric acid	Dimethacrylate, maleic acid, modified polyacrylic acid, fluoride compound, water
MAC-BOND II (Tokuyama)	*Self-etching Primer* MAC-10, acetone, alcohol, water, Methacryloyloxyalkylacid phosphate	*Bonding Agent* MAC-10, Bis-GMA, TEGDMA, HEMA, photosensitizer
Superbond D-Liner Dual PLUS (Sun Medical)	10% citric acid-3% $FeCl_3$	4 META, MMA/TBB
ONE COAT BOND (Coltène®)	15% phosphoric acid	HEMA, HPMA, Glycerol dimethacrylate, polyalkenoate methacrylized, UDMA, Amorphous silicia
Scotchbond™ Multi-Purpose (3 M)	10% maleic acid, water, polyvinyl alcohol thickener	*Primer* HEMA,polyalkenoic acid copolymer, water

1. I 군 : Scotchbond™ Multi-Purpose (3M Dental Products)를 상아질 면에 도포한 군

교합면 측 상아질 원판을 5초간 압축공기로 건조시킨 후 Scotchbond

Multi-Purpose Etchant(10% maleic acid)로 15초간 산 처리하였다. 15초간 수세하고 5초간 과량의 수분을 제거한 후 Scotchbond Multi-Purpose Primer를 1회 도포하여 5초간 건조시켰다. 표면이 윤기가 나지 않는 부분이 있으면 1회 재도포 후 다시 건조시키고 Scotchbond Multi-Purpose Adhesive를 균일하게 도포하여 10초 동안 광중합시켰다.

2. Ⅱ군 : ONE-STEP® (Bisco)을 상아질면에 도포한 군

상아질 원판을 5초간 압축공기로 건조시킨 후 Uni-Etch(32% phosphoric acid)로 15초간 산 처리하고 철저히 수세하였다. 압축공기로 과량의 수분만 제거하여 표면이 윤기를 띄게 하였다. ONE-STEP® Adhesive를 연속하여 2회 도포하고 10초 동안 압축공기로 건조시켜 과량의 용매와 수분을 제거하였다. 만일 표면에 윤기가 없는 경우는 ONE-STEP® Adhesive를 다시 바르고 10초 동안 광중합시켰다.

3. Ⅲ군 : Prime & Bond® 2.1 (DENTSPLY)을 상아질면에 도포한 군

상아질 원판을 5초간 압축공기로 건조시킨 후 DeTrey Conditioner(36% phosphoric acid)로 15초간 산 처리하고 15초 이상 철저히 수세하였다. 압축공기를 살짝 불어 과량의 수분만 제거하고 Prime & Bond® 2.1을 한 겹 바르고 30초동안 방치하였다가 2-3초 동안 압축공기를 이용하여 과량의 용매를 제거하고 10초 동안 광중합시켰다. Prime & Bond® 2.1을 다시 한 겹 바르고 과량의 용매를 압축공기로 제거한 후 10초 동안 광중합시켰다.

4. Ⅳ군 : Single Bond(3M Dental Products)를 상아질면에 도포한 군

상아질 원판을 5초간 압축공기로 건조시킨 후 Scotchbond Etchant (35% phosphoric acid)로 15초간 산 처리하고 10초 동안 수세하였다. 과량의 수분을 2-3초 동안 blot drying시킨 후 Single Bond Adhesive를 균일하게 2회 도포하고 2-5초 동안 살짝 건조시켜 10초 동안 광중합시켰다.

5. V군 : Syntac® Single-Component™(VIVADENT)를 상아질면에 도포한 군

상아질 원판을 5초간 압축공기로 건조시킨 후 37% phosphoric acid로 15초 동안 산 처리하고 철저히 수세하였다. 상아질이 너무 건조되지 않게 압축공기로 건조시킨 후 brush를 이용하여 Syntac® Single-Component™를 1회 도포하여 20초 동안 기다린 후 압축공기로 건조시키고 20초 동안 광중합시켰다. Syntac® Single-Component™를 1회 재도포하고 기다림없이 즉시 건조시키고 20초 동안 광중합시켰다.

6. VI군 : TOKUSO MAC-BOND II (Tokuyama)를 상아질면에 도포한 군

상아질 원판을 5초간 압축공기로 건조시킨 후 Primer A와 Primer B를 한방울씩 떨어뜨려 바로 혼합하고 minisponge로 도포하였다. 20초 동안 방치한 후 약한 압축공기로 완전히 건조시켰다. Bonding agent를 도포하고-한쪽 구석에 몰려있는 경우만 공기를 불어준다- 10초 동안 광중합시켰다.

7. VII군 : D-Liner Dual PLUS (Sun Medical)를 상아질면에 도포한 군

상아질 원판을 5초간 압축공기로 건조시킨 후 sponge pledget을 이용하여 Green Activator(10% citric acid+3% ferric chloride)로 5-10초 동안 산처리하고 수세하고 건조시켰다. D-Liner Dual Base와 Catalyst S를 1방울씩 떨어뜨려 3-5초간 혼합한 후 sponge pledget을 이용하여 혼합체를 즉시 도포하였다. 20초 동안 기다린 후 압축공기를 살짝 불고 10초 동안 광중합시켰다.

8. VIII군 : ONE COAT BOND (Coltène®)를 상아질면에 도포한 군

상아질 원판을 5초간 압축공기로 건조시킨 후 Etchant 15 (15% phosphoric acid)로 30초 동안 산부식시키고 20초 동안 수세하였다. 압축공기로 과량의 물만 제거하고 brush에 ONE COAT BOND를 직접 적셔서 상아질면에 20초 동안 massage한 후 압축공기로 살짝 건조시키고 30초 동안 광중합시켰다.

각각의 상아질 접착제를 도포한 상아질 원판의 중앙부위에서 가로, 세로 약 1

㎜의 막대기 모양이 되게 수주하에 Minitome (Struers, Denmark)을 이용하여 레진-상아질 경계면에 수직되는 방향으로 절단하였다. 투과전자현미경 관찰을 위하여 다음과 같이 처치하였다.

2% Glutaraldehyde에 4일동안 고정한 후 5% EDTA 용액으로 실온에서 5일동안 매일 용액을 교환해주면서 시편을 탈회시켰다. 탈회된 시편을 0.1M Cacodylate buffer 완충액(pH 7.4)으로 조정한 Karnovsky 고정액 (2% Glutaraldehyde, 2% Paraformaldehyde, 0.5% $CaCl_2$)으로 하루동안 전고정한 후 0.1M Cacodylate buffer로 2시간동안 수세하고 1.33% OsO_4로 2시간 후고정하였다. 후고정된 시편은 0.1M Cacodylate로 10분간 수세후 저농도 Alcohol에서 무수 Alcohol까지- 50%, 60%, 70%, 80%, 90%, 95%, 100% 순- 탈수(dehydration)한 후 Propylene oxide에 10분간 치환하였다. 이어서 EPON mixture (EPON 812, MNA, DDSA, DMP30)와 Propylene oxide를 1:1로 혼합하여 overnight(약 18시간 정도)한 후 포매(Embedding)-E.M oven에서 35℃ 6시간, 45℃ 12시간, 60℃ 24시간-하였다. E.M oven에서 꺼낸 block을 trimming하고 ULTRACUT ultramicrotome (LEICA)을 이용하여 시편을 1㎛ 두께로 semithin section하였다. 이 절편을 1% Toluidine blue로 염색하여 광학현미경으로 관찰한 다음 투과전자현미경으로 관찰하고자 하는 부위를 정하여 retrimming한 후 70㎚정도 두께로 ultrathin section을 하여 200-mesh copper grid에 수집하였다. Ultrathin section한 절편을 모은 grid를 2% Uranyl acetate와 Lead citrate로 이중염색을 한 후 80 kV하에 투과전자현미경 (Philips CM-10, Philips, Eindhoven, The Netherlands)으로 관찰하고 KODAK 4489 필름으로 촬영하였다.

Ⅲ. 실험성적

1. Ⅰ군 : Scotchbond™ Multi-Purpose (3M Dental Products)를 상아질면에 도포한 군

혼성층이 관찰은 되지만 혼성층 내의 electron-density가 균일하지 않았고, 하층으로 갈수록 electron-density가 떨어지는 양상을 보였다. 혼성층과 산부식되지 않은 상아질 사이의 경계는 뚜렷하지가 않았다(Fig.1). 혼성층의 최상층에는 amorphous phase를 관찰할 수 있는데, 여기에는 기포나 물로 추정되는 electron-lucent vacuole을 다수 포함하는 경우도 발견되었다. 이 amorphous phase는 resin tag까지도 들어가 있었다. Cross-section된 교원섬유 사이로 interfibrillar space의 관찰이 가능하였다(Fig.2).

2. Ⅱ군 : ONE-STEP® (Bisco)을 상아질면에 도포한 군

혼성층은 잘 관찰되었으며 주로 관주상아질에 형성되어 있고 관간상아질에는 거의 형성되지 않은 소견을 보였다. 혼성층의 상층과 접착레진 사이에 교원섬유의 projection은 거의 관찰되지 않았다(Fig.3). Band를 관찰할 수 있는 교원섬유가 상아세관과 수직으로 주행하는 것이 혼성층의 상층에서 많이 발견되었다(Fig.4).

3. Ⅲ군 : Prime & Bond® 2.1 (DENTSPLY)을 상아질면에 도포한 군

혼성층은 거의 균일한 두께로 electron-dense하게 관찰되었으며 혼성층의 상층에는 접착레진 쪽으로 많은 projection이 관찰되고 하층에는 레진에 싸인 수산화인회석으로 보이는 진한 선을 볼 수 있다(Fig.5). 혼성층 내에 banded collagen이 다수 관찰되었다(Fig.6).

4. Ⅳ군 : Single Bond (3M Dental Products)를 상아질면에 도포한 군

혼성층이 뚜렷하게 관찰되지 않았다. 혼성층 내의 electron-density가 균일하지 않았고, 산부식되지 않은 상아질과의 경계도 뚜렷하지 않았다. 산부식된 상아질 최

상층에 electron-dense한 amorphous phase를 볼 수 있었다(Fig.7). 접착레진과 혼성층 사이에 overwet phenomenon으로 보이는 electron-lucent한 기포를 다수 포함하는 물방울이 관찰되었다(Fig.8).

5. V군 : Syntac® SC™ (VIVADENT)를 상아질면에 도포한 군

혼성층은 잘 관찰되었으며 혼성층과 산부식되지않은 상아질과의 경계부는 뚜렷하였고 혼성층의 최상층에는 electron-lucent한 amorphous phase를 관찰할 수 있었다. 혼성층의 최하방에는 레진에 싸인 수산화인회석으로 추측되는 electron-dense한 층이 관찰되었으며 상아세관벽과 상아세관의 측면 가지에도 hybridization이 잘된 것을 볼 수 있었다(Fig.9). 교원섬유의 cross banding이 잘 관찰되고 레진에 싸인 수산화인회석으로 추측되는 것이 뭉쳐져 있는 부분도 관찰되었다(Fig.10).

6. VI군 : TOKUSO MAC-BOND II (Tokuyama)를 상아질면에 도포한 군

혼성층이 폭은 좁지만 균일하게 형성돼 있는 모습을 보이며 관주상아질에는 hybridization의 소견이 관찰되지 않았다(Fig.11). 교원섬유의 cross banding도 관찰되고 교원섬유 bundle과 interfibrillar space도 명확히 관찰되었다. 혼성층의 상층에 교원섬유의 projection이 많이 관찰되고 'shag carpet appearance'를 선명하게 보였다(Fig.12).

7. VII군 : D-Liner Dual PLUS (Sun Medical)를 상아질면에 도포한 군

혼성층은 관찰되지 않았고, 산부식시 탈회된 것으로 보이는 상아질층이 접착레진과 탈회되지않은 상아질 사이에서 관찰되었다(Fig.13). Organic polymer 성분으로 추측되는 sheath에 싸여있는 particle이 관찰되었고, 이것이 상아세관까지 들어가 있는 것이 관찰되었다(Fig.14).

8. VIII군 : ONE COAT BOND (Coltène®)를 상아질면에 도포한 군

혼성층은 뚜렷하게 관찰되지 않았으며 상아질과 접착레진 사이에

electron-dense한 amorphous phase를 관찰할 수 있었다(Fig.15). 상아세관과 상아세관의 lateral branch에는 접착레진이 잘 침투해 들어간 모습을 볼 수 있었다(Fig.16).

IV. 총괄 및 고찰

치아에 영구적이면서도 완전한 결합을 갖는 것은 현재 사용되고 있는 수많은 치과용 수복물의 궁극적인 목표일 것이다. 특히 경제적인 여유가 생기고 개개인의 사회생활이 활발해지면서 치과용 수복물이 저작, 발음과 같은 기능적인 요소 외에도 심미적인 요소의 증진을 위한 환자의 요구가 크게 늘어나게 되었으며 이런 목적을 위해 개발된 재료가 치과용 복합레진이다. 복합레진을 상아질에 결합시켜주는 상아질 접착제는 개선을 거듭하여 최근에는 임상술식을 단순화하고 치료시간을 줄이기 위해서 단일용기 상아질 접착제가 도입되었다. 단일용기 상아질 접착제의 상아질에 대한 결합력을 측정하는 연구는 많이 시행되었으나[9,13,26,48,49,56], 단일용기 상아질 접착제를 처리한 후 레진과 상아질 사이의 경계면에 대한 미세형태학적 연구는 미미한 상태이다. 이에 본 연구에서는 최근 시판되고 있는 여러 가지 단일용기 상아질 접착제를 상아질에 처리한 후 레진과 상아질 사이의 경계면을 투과전자현미경을 이용하여 관찰함으로써 단일용기 상아질 접착제와 상아질과의 경계면의 양상을 규명하고, 복합용기 상아질 접착제와 다른 모습을 보이는지 비교하고자 하였다.

본 실험에서 상아질 접착제를 도포하는 상아질면으로 치아우식증이 없는 제 3 대구치를 사용한 이유는 다른 영구치는 발치된 경우 심한 치아우식증이 있거나 중증의 치주염이 있는 경우가 대부분이어서 상아질이 탈회 또는 과광화되어 있을 가능성이 많았고, 교정치료를 하기 위해 소구치를 발치한 경우는 대부분 어린 나이여서 치수각이 높이 솟아있어 치수각의 노출 없이 상아질 원판을 얻기가 어려울 것으로 예상되었기 때문이다.

본 실험에서 사용한 투과전자현미경 초박절편은 제작하는 과정에서 탈회시키고 epoxy 레진에 포매하였다. 전자현미경 관찰을 위한 초박절편 제작시 epoxy 레진에 포매하는 것은 첫째, 조직의 integrity를 유지시켜서 고정되고 탈수된 연조직을 안정시키고, 둘째로 수축(shrinkage)과 붕괴(collapse)로 인한 artifact가 생기는 것을 막아주며 ultramicrotomy를 가능하게 해주기 때문이다. Epoxy 레진에 포매

하는 과정에서 혼성층 하방의 microporosity에 epoxy 레진이 침투해서 원래의 레진-상아질 경계면 양상과 다르게 보일 수 있는 가능성이 있으나[32] Van Meerbeek 등[65]에 의하면 epoxy 레진에 포매한 것과 포매하지 않은 표본에서 투과전자현미경으로 관찰했을 때 관찰되는 양상은 별 차이가 없다고 하였다. 따라서 본 실험에서는 초박절편 제작상의 편의를 위해서 epoxy 레진에 포매하고 제작하였다.

현재까지 resin tag, adhesive lateral branch와 혼성층의 질이 레진과 상아질 간의 결합력에 미치는 역할은 명확하지는 않지만 긍정적인 영향을 끼치는 것으로 생각되고 있다[4,19,32]. 혼성층 하방 상아질층에 adhesive lateral branch가 존재함을 Charpell등은[4] 실험실에서, Ferrari등은[12] 생체실험에서 보고하였으며, Mjör와 Nordhal[30]은 branching pattern을 3차원적으로 관찰하여 관간상아질을 교차(criss-crossing)하는 많은 canaliculi의 존재를 밝혔다. 본 실험에서 투과전자현미경으로 관찰한 결과 Charpell등[4]과 Ferrari 등[12]이 주사전자현미경 관찰을 통해 보고한 것처럼 상아세관의 lateral branch가 많이 관찰되었다. 이 lateral branch 주위에는 hybridization이 잘 일어나서 lateral branch와 연결되어 있는 상아질에도 혼성층이 형성되어 있는 것을 관찰할 수 있었다.

상아질을 산부식시키면 도말층과 상아질내의 무기물이 용해되고, 교원섬유가 그 지지구조를 잃은 채 표면에 노출되게 된다. 혼성층이 잘 형성되기 위해서는 노출된 교원섬유 사이로 레진이 침투해 들어가야 한다. 그러나 상아질 산부식후 상아질 표면이 너무 건조되면 교원섬유의 망상구조가 붕괴되고 레진이 침투해 들어가기 어렵게 되며, 반대로 상아질 표면이 너무 젖어있으면 소위 overwet phenomenon[53,54]이 생겨서 혼성층의 형성이 어려워진다. 본 실험에서도 Scotchbond™ Multi-Purpose와 Single Bond의 일부 시편에서 overwet phenomenon이 생긴 것으로 추측되는데, 이는 water base 상아질 접착제인 Scotchbond™ Multi-Purpose와 Single Bond의 접착강화제에 물이 포함되어 있는데도 상아질에 도포하기 전에 상아질 표면을 너무 젖게 함으로써 생긴 현상으로 사료된다. 각 상아질 접착제들의 사용설명서에 따른 습윤접착법을 시행하였으나 Scotchbond™ Multi-Purpose와 Single Bond의 일부 시편에서는 overwet phenomenon이 생겼으므로, 임상에서 습윤접착법을 정확하게 적용하기는 간단하지

가 않다고 생각된다. Kanca등이[25] air syringe로 3㎝의 거리에서 1-2초동안 살짝 건조시키는 것을 주장했지만 이것을 모든 상아질 접착제에 적용시키기에는 다소 무리가 있을 것으로 생각되며 각 상아질 접착제에 따라 너무 건조되지 않으면서 overwet phenomenon을 피할 수 있는 명확한 지침이 있어야 할 것으로 생각된다.

Tay등은[55] water-free acetone base 상아질 접착제인 ONE-STEP®을 이용한 실험에서 산부식된 상아질을 건조 후 레진을 적용시켰을 때보다 건조후 re-wetting 시켰을 때 레진의 침투가 더 잘 일어난다고 보고하였고, Gwinnett은[18] 레진과 상아질의 결합력을 측정한 실험에서 건조된 상아질에 레진을 접착시켰을 때 그 결합력은 떨어지지만 건조된 상아질을 rewetting 시킨 후 측정한 결합력은 습윤접착시 얻을 수 있는 결합력과 유사하다고 보고하였다. 습윤접착법이 술자의 technique-sensitive 하기 때문에 이런 실험결과를 바탕으로 상아질의 산부식후 법랑질과 상아질을 건조시켜 법랑질이 산부식된 것을 확인하고 상아질을 rewetting 시킨 후 상아질 접착제를 처리하는 것도 임상적으로 이용할 수 있는 방법으로 생각된다.

Van Meerbeek등은[61] Clearfil Liner Bond System(Kuraray, Osaka, Japan)을 상아질에 도포한 후 레진-상아질 경계면을 투과전자현미경으로 관찰한 결과 레진이 침투된 상아질층에 세가지 층이 존재하는 것을 처음으로 발견하였다. 제일 상층은 electron-dense한 층으로서 별다른 구조적 특징을 보이지 않으며, 그 하방에는 부분적으로 변형된 collagen fibril의 배열을 갖는 중간층이 electron-lucent하게 보이며 collagen fibril들은 주로 레진-상아질 경계면과는 평행하게, 상아세관에는 수직으로 주행하는 모습을 보였다. 제일 하방에는 레진에 싸인 수산화인회석 결정을 포함하는 electron-dense한 층을 관찰하였다. 그러나, Tay 등은[51] 물을 포함하지 않는 결합강화제를 이용한 실험에서 레진을 도포하기 전에 산부식된 상아질을 너무 건조시켰을 때 위와 같은 양상이 관찰되고, 산부식된 상아질이 습윤된 상태에서 레진을 적용시키면 혼성층 내에서 구분되는 어떤 층도 관찰되지 않는다고 하였다. Hybridoid region이라 일컬어지는 electron-lucent한 중간층이 없다는 것은 관간상아질 내로 접착강화제가 잘 침투되었음을 나타낸다고 추측할 수 있다. 본 실험에서는 뚜렷하게 hybridoid region이라 할 수 있는 electron-lucent한 중간층을

보이는 실험군은 관찰되지 않았는데 이것으로 미루어 상아질 접착제 처리 전에 상아질면이 너무 건조되지는 않았던 것으로 사료된다.

본 실험에서 Scotchbond™ Multi-Purpose를 상아질면에 도포한 군을 대조군으로 정하였는데 그 이유는 임상에서 오랜 기간동안 성공적으로 많이 이용되어 왔으며 또한 많은 실험결과를 갖고 있기 때문이었다. 대조군의 투과전자현미경 관찰 소견은 혼성층 내의 electron-density가 균일하지 않았고, 혼성층 최상층에 electron-dense한 amorphous phase가 관찰되었는데 이것은 Van Meerbeek등[64-66]이 투과전자현미경으로 관찰한 결과와 일치하였다. 혼성층 최상층의 amorphous phase는 Single Bond와 ONE COAT BOND를 도포한 실험군에서도 관찰되었는데, 위 세가지 상아질 접착제의 구성성분 중에는 polyalkenoic acid copolymer가 공통적으로 들어있으며 이 polyalkenoic acid copolymer가 상아질 내에 남아있던 Ca^{2+}과 반응하여 amorphous phase를 만들어낸 것으로 추측하고 있다.

ONE-STEP®을 상아질에 도포한 실험군에서는 혼성층이 주로 관주상아질에 형성되어 있는 모습을 관찰할 수 있었다. 관간상아질에는 관주상아질이나 상아세관의 lateral branch를 통해서 약간의 hybridization이 이루어진 것으로 판단된다. 그리고 혼성층의 최상층과 접착레진과의 경계면은 교원섬유의 projection없이 매끄러운 양상을 보였는데 이것은 Tay등의[55]연구에 의하면 산부식후 상아질이 건조되었다가 rewetting되었을 때 나타나는 양상으로 보여진다.

Syntac® SC를 상아질에 도포한 실험군에서는 특징적으로 레진에 싸여있는 수산화인회석으로 추측되는 electron-dense한 층이 관찰되었는데, 이는 산부식시 상아질 표층의 수산화인회석이 제거된 후 접착강화제와 접착제가 상아질 내로 침투해 들어가면 남아있던 수산화인회석이 레진에 둘러싸이게 된다. 이 후에 투과전자현미경 관찰을 위한 시편제작 과정에서 탈회시키게 되면 산부식되지 않은 상아질 내에 남아있던 수산화인회석이 제거되고 산부식제나 탈회액에 저항할 수 있는 레진에 싸인 수산화인회석만 남아서 투과전자현미경 관찰을 통해서 electron-dense한 층으로 나타나게 된다[55]. 또한 Syntac® SC의 시편제작 과정에서 혼성층이 찢기고 떨어져나간 모양이 자주 관찰되었는데 이러한 현상이 혼성층과 상아질과의 결합력에 문제가 있어서인지 아니면 시편제작 과정에 문제가 있는 것인지에 대해

연구할 필요가 있다고 생각된다.

TOKUSO MAC-BOND Ⅱ는 이번 실험에 사용된 단일용기 상아질 접착제 중에서 유일하게 산부식제와 접착강화제가 한 용기에 들어있는 상아질 접착제이다. 따라서 시술과정도 상아질을 산부식시킨 후 산부식제를 물로 씻어내지 않고 그냥 건조시키며 습윤접착법의 개념을 이용하지 않기 때문에 임상적으로 이용하는데는 편리한 점이 많은 것으로 여겨진다. 투과전자현미경 관찰소견으로 알 수 있는 결합양상으로는 혼성층이 뚜렷하게 생겨있으며 electron-density가 균일한 것으로 미루어 결합력이나 변연누출에 대한 연구를 통해 이러한 상아질 접착제의 유용성에 대해 평가해 보는 것도 필요하리라 생각된다.

TOKUSO MAC-BOND Ⅱ를 상아질에 도포한 실험군의 투과전자현미경 관찰에서 시편 전체에 걸쳐서 무수히 많은 까만 점들이 산재해 있는 것을 볼 수 있었는데, 이 점들은 초박절편 제작전에 광학현미경 관찰을 위해서 toluidine blue 용액으로 염색하는 과정에서 여과지 (filter paper)의 손상등으로 인해 여과가 제대로 되지 않았기 때문으로 생각된다.

D-Liner Dual PLUS를 상아질에 도포한 실험군에서는 혼성층이 관찰되지 않고 접착레진과 상아세관 안에 organic polymer 성분으로 추측되는 particle들이 sheath에 싸여서 있는 것이 관찰되었는데 이것은 결합력을 증가시키기 위해서 첨가한 것으로 생각되나 큰 sheath가 상아질면을 막아서 혼성층이 생기는 것을 방해하는 것으로 추측된다.

ONE COAT BOND를 상아질에 도포한 실험군에서는 혼성층은 관찰할 수 없었던 반면 상아세관 내로 접착제가 잘 침투해 들어간 양상을 보였는데, 이것은 접착제를 도포하는 방법이 상아질면을 massage하기 때문이 아닌가 생각된다. 산부식시킨 후 노출된 교원섬유의 망상구조가 massage할 때 붕괴되면서 접착제가 침투하지 못해서 혼성층은 형성되지 않고 massage 작용으로 상아세관 내로는 접착제가 잘 밀려 들어간 것으로 생각된다.

투과전자현미경 관찰을 할 때 나타나는 각각의 특징적인 양상에 대해 확실한 정의를 내리기 위해서는 다른 여러 가지 분석법과 병행하는 연구가 되어야 할 것으로 사료된다. 본 실험은 제조회사의 지시대로 단일용기 상아질 접착제를 도포한

후 바로 시편을 제작하여 투과전자현미경으로 관찰하였는데, 차후에는 실험조건을 달리하여 thermocycling을 시행한 후나 일정한 교합력을 가한 후의 변화에 대해서도 더 연구가 필요하리라 생각되며, 레진과 상아질 사이의 결합력 측정 실험을 통해 결합력과 혼성층의 상관관계에 대해서도 더 많은 연구가 필요할 것으로 생각된다.

여러 상아질 접착제를 처리하고 레진과 상아질 사이의 경계면을 투과전자현미경으로 관찰한 결과 각각의 상아질 접착제를 구성하고 있는 성분과 상아질 접착제를 적용시키는 방법에 따라서 조금씩 다른 양상을 보였으나, 단일용기 상아질 접착제와 복합용기 상아질 접착제 사이의 용기체계에 따른 차이는 관찰되지 않았으므로 단일용기 상아질 접착제도 임상적으로 유용한 것으로 사료된다.

V. 결 론

본 연구는 레진을 이용한 치료에서 접착과정을 단순화하고 치료단계를 줄이기 위해서 최근 시판되고 있는 여러 가지 단일용기 상아질 접착제의 상아질에 대한 결합양상을 평가하고자 레진과 상아질 사이의 경계면을 투과전자현미경을 이용하여 관찰하였다. 투과전자현미경 관찰을 위하여 발거한 지 한 달 이내의 치아우식증이 없는 제 3대구치를 백아-법랑 경계부 상방 1㎜에서 절단하여 치근부위를 버리고 교합면측 법랑질 부위에 2차로 평행되게 절제하여 1㎜ 두께의 상아질 원판을 제작하였다. 7개의 단일용기 상아질 접착제와 1개의 복합용기 상아질 접착제를 제조회사의 지시대로 상아질 원판에 도포한 후 투과전자현미경 관찰을 통하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

1. 모든 실험군에서 교원섬유의 cross banding이 뚜렷하게 관찰되었고, 상아질 접착제와 상아질 사이에는 긴밀한 결합을 갖는 것으로 관찰되었다.

2. 혼성층은 ONE-STEP®, Prime & Bond®2.1, Syntac® SC, MAC-BOND Ⅱ를 도포한 실험군에서 명확하게 관찰되었고, Single Bond, D-Liner Dual PLUS, ONE COAT BOND를 도포한 실험군에서는 관찰되지 않았다.

3. 혼성층 내의 electron-density는 MAC-BOND Ⅱ, Prime & Bond® 2.1을 도포한 실험군에서 균일하였고, ONE-STEP®을 도포한 실험군에서는 균일하지 않았다.

4. Single Bond, Syntac® SC, ONE COAT BOND를 도포한 실험군에서는 레진-상아질 경계면의 최상층에 electron-dense한 amorphous phase가 특징적으로 관찰되었다.

이상에서 상아질 접착제와 상아질과의 경계면은 상아질 접착제 각각의 화학 성분과 결합시 상아질의 조건에 따라 다양한 형태로 관찰되었으나 긴밀한 결합을 보였으므로 단일용기 상아질 접착제가 임상적으로 유용한 것으로 사료된다.

참 고 문 헌

1. Bowen R.L. : Adhesive bonding of various materials to hard tooth tissues. II. Bonding to dentin promoted by a surface-active comonomer, J Dent Res, 44:895-902, 1965.

2. Buonocore M.G. : A simple method of increasing the adhesion of acrylic filling materials to enamel surfaces, J Dent Res, 34:849-853, 1955.

3. Buonocore M.G., Wileman W., Brudevold F. : A report on a resin composition capable of bonding to human dentin surfaces, J Dent Res, 35:846-851, 1956.

4. Chappell R.P. et. al. : Dentinal tubule anastomosis: A potential factor in adhesive bonding ?, J Prosthet Dent, 72:183-188, 1994.

5. Chappell R.P., Eick J.D. : Shear bond strength and scanning electron microscopic observation of six current dentinal adhesives, Quintessence Int, 25:359-368, 1994.

6. Cox C.F. et.al.: Biocompatibility of surface-sealed dental materials against exposed pulps, J Prosthet Dent, 57:1-8, 1987.

7. Eick J.D. et . al. : The dentinal surface : Its influence on dentinal adhesion, Part III., Quintessence Int, 24:571-582, 1993.

8. Eick J.D. et. al. : Scanning Transmission Electron Microscopy/ Energy-dispersive Spectroscopy Analysis of the Dentin Adhesive Interface Using a Labeled 2-Hydroxyethylmethacrylate Analogue, J Dent Res, 74:1246-1252, 1995.

9. El-Kalla I.H., Garcia-Godoy F. : Saliva contamination and bond strength of single-bottle adhesives to enamel and dentin, Am J Dent, 10:83-87, 1997.

10. Erickson R.L. : Mechanism and clinical implications of bond formation for two dentin bonding agents, Am J Dent, 2:117-123, 1989.

11. Ferrari M., Cagidiaco C.M., Mason P.N.: Morphologic aspects of the resin-dentin interdiffusion zone with five different dentin adhesive systems tested in vivo, J Prosthet Dent, 71:404-408, 1994.

12. Ferrari M., Davidson C.L. : In vivo resin-dentin interdiffusion and tag formation with lateral branches of two adhesive systems, J Prosthet Dent, 76:250-253, 1996.

13. Ferrari M., Goracci G., Garcia-Godoy F. : Bonding mechanism of three "one-bottle" systems to conditioned and unconditioned enamel and dentin, Am J Dent, 10:224-230, 1997.

14. Flynn M. : Six-year evaluation of in vivo perfomance of cervical restorative materials [abstract 322] , J Dent Res, 61:214, 1982.

15. Fuks A.B., Funnell B., Cleaton-Jones P. : Pulp response to a composite resin inserted in deep cavities with and without a surface seal, J Prosthet Dent, 63:129-134, 1990.

16. Fusayama T. et. al. : Non-pressure Adhesion of a New Adhesive Restorative Resin, J Dent Res, 58:1364-1370, 1979.

17. Griffiths B.M., Watson T.F. : Resin-dentin interface of Scotchbond Multi-Purpose dentin adhesive, Am J Dent, 8:212-216, 1995.

18. Gwinnett A.J. : Dentin bond strength after air drying and rewetting, Am J Dent, 7:144-148, 1994.

19. Gwinnett A.J. et. al. : Quantitative contribution of the collagen network in dentin hybridization, Am J Dent, 9:140-144, 1996.

20. Heymann H.O., Bayne S.C. : Current Concepts in Dentin Bonding; focusing on dentinal adhesion factors, J Am Dent Assoc, 124:27-36, 1993.

21. Imai Y. et. al. : Importance of Polymerization Initiator Systems and Interfacial Initiation of Polymerization in Adhesive Bonding of Resin to Dentin, J Dent Res, 70:1088-1091, 1991.

22. Inokoshi S. et. al. : Interfacial Structure Between Dentin and Seven Dentin Bonding Systems Revealed Using Argon Ion Beam Etching, Oper Dent, 18:8-16, 1993.

23. Jendresen M.D. : Clinical performance of a new composite resin for Class V erosion [abstract 1057] , J Dent Res, 57:339, 1978.

24. Kanca J.III : Resin bonding to wet substrate. I.Bonding to dentin, Quintessence Int, 23:39-41, 1992.

25. Kanca J.III : Wet bonding : Effect of drying time and distance, Am J Dent, 9:273-276, 1996.

26. Kanca J.III : One Step bond strength to enamel and dentin, Am J Dent, 9:5-8, 1997.

27. Kinloch A.J. : Adhesion and adhesives. Science and technology. London : Chapman and Hall. (Cited)

28. Lee H.L. et.al. : Effects of acid etchant on dentin, J Dent Res, 52:1228-1233, 1973.

29. Macko D.J., Rutberg M., Langeland K. : Pulpal response to the application of phosphoric acid to dentin, Oral Surg Oral Pathol, 45:930-946, 1978.

30. Mjör I.A., Nordhal I. : The density and branching of dental tubules in human teeth, J Dent Res, 75:346 [Abstract 2628], 1996.

31. Nakabayashi N., Kojima K., Masuhara E. : The promotion of adhesion by the infiltration of monomers into tooth substrates, J Biomed Mater Res, 16:265-273, 1982.

32. Nakabayashi N., Ashizawa M., Nakamura M.: Identification of a resin-dentin hybrid layer in vital human dentin created in vivo: durable bonding to vital dentin, Quintessence Int, 23:135-141, 1992.

33. Nakabayashi N., Watanabe A., Ikeda W.: Intra-oral bonding of 4-META/MMA-TBB resin to vital human dentin, Am J Dent,

8:37-42,1995.

34. Pashley D.H. et. al. : SCANNING ELECTRON MICROSCOPY OF THE SUBSTRUCTURE OF SMEAR LAYERS IN HUMAN DENTINE, Archs Oral Biol, 33:265-270, 1988.

35. Pashley D.H. : Interactions of dental materials with dentin, Trans Acad Dent Mater, 3:55-73, 1990.

36. Pashley D.H. : The effects of acid etching on the pulpodentin complex, Oper Dent, 17:229-242, 1992.

37. Pashley D.H. et.al. : Permeability of dentin to adhesive agents, Quintessence Int, 24:618-631, 1993.

38. Perdigao J. et. al. : In vitro Bond Strengths and SEM Evaluation of Dentin Bonding Systems to Different Dentin Substrates, J Dent Res, 73:44-55, 1994.

39. Prati C. et. al. : Resin-infiltrated Dentin Layer Formation of New Bonding Systems, Oper Dent, 23:185-194, 1998.

40. Retief D.H., Austin J.C., Fatti L.P. : Pulpal response to phosphoric acid, J Oral Pathol, 3:114-122, 1974.

41. Sano H. et. al. : Comparative SEM and TEM Observations of Nanoleakage within the Hybrid Layer, Oper Dent, 20:160-167, 1995.

42. Schupbach P., Krejci I., Lutz F. : Dentin bonding: effect of tubule orientation on hybrid layer formation, Eur J Oral Sci, 105:344-352, 1997.

43. Shimada Y. et. al. : In Vivo Adhesive Interface between Resin and Dentin, Oper Dent, 20:204-210, 1995.

44. Skogedal O., Eriksen H.M. : Pulpal reactions to surface-sealed silicate cements and composite resin restorations, Scand J Dent Res, 84:381-385, 1976.

45. Stanley H.R., Going R.E., Chauncey H.H. : Human pulp response to acid pretreatment of dentin and to composite restoration, J Am Dent Assoc, 91:817-825, 1975.

46. Suzuki M., Kato H., Wakumoto S. : Vibrational analysis by Raman spectroscopy of the interface between dental adhesive resin and dentin, J Dent Res, 70:1092-1097, 1991.

47. Swift E.J., Perdigao J., Heymann H.O. : Bonding to enamel and dentin: A brief history and state of the art, 1995, Quintessence Int, 26:95-110, 1995.

48. Swift E.J., Bayne S.C. : Shear bond strength of a new one-bottle dentin adhesive, Am J Dent, 10:184-188, 1997.

49. Swift E.J.Jr. et. al. : Shear Bond Strengths of One-Bottle Dentin Adhesives Using Multiple Applications, Oper Dent, 22:194-199, 1997.

50. Tay F.R. et. al. : Micromorphologic relationship of the resin-dentin interface following a total-etch technique in vivo using a dentinal bonding system, Quintessence Int, 26:63-70, 1995.

51. Tay F.R. et. al. : Resin Permeation into Acid-conditioned, Moist, and Dry Dentin : A Paradigm using Water-free Adhesive Primers, J Dent Res, 75:1034-1044, 1996.

52. Tay F.R., Gwinnett A.J., Wei S.H.Y. : Micromorphological spectrum from overdrying to overwetting acid-conditioned dentin in water-free, acetone-based, single-bottle primer/adhesives, Dent Mater, 12:236-244, 1996.

53. Tay F.R., Gwinnett A.J., Wei S.H.Y. : The overwet phenomenon: An optical, micromorphological study of surface moisture in the acid-conditioned, resin-dentin interface, Am J Dent, 9:43-48, 1996.

54. Tay F.R., Gwinnett A.J., Wei S.H.Y. : The overwet phenomenon: A scanning electron microscopic study of surface moisture in the acid-conditioned, resin-dentin interface, Am J Dent, 9:109-114, 1996.

55. Tay F.R., Gwinnett A.J., Wei S.H.Y.: Ultrastructure of the resin-dentin interface following reversible and irreversible rewetting, Am J Dent, 10:77-82, 1997.

56. Tjan A.H.L., Castelnuovo J., Liu P. : Bond strength of multi-step and simplified-step systems, Am J Dent, 9:269-272, 1996.

57. Torney D.L. : The retentive ability of acid-etched dentin , J Prosthet Dent, 39:169-172, 1978.

58. Uno S., Finger W.J.: Function of the hybrid zone as a stress-absorbing layer in resin-dentin bonding, Quintessence Int, 26:733-738, 1995.

59. Uno S., Finger W.J.: Effects of acidic conditioners on dentine demineralization and dimension of hybrid layers, J Dent, 24:211-216, 1996.

60. Van Meerbeek B. et. al. : Morphological Aspects of the Resin-Dentin Interdiffusion Zone with Different Dentin Adhesive Systems, J Dent Res, 71:1530-1540, 1992.

61. Van Meerbeek B. et. al. : Comparative SEM and TEM Examination of the Ultrastructure of the Resin-Dentin Interdiffusion Zone, J Dent Res, 72:495-501, 1993.

62. Van Meerbeek B. et. al. : Chemical Characterization of the Resin-Dentin Interface by Micro-Raman Spectroscopy, J Dent Res, 72:1423-1428, 1993.

63. Van Meerbeek B. et. al. : Assessment by Nano-indentation of the Hardness and Elasticity of the Resin-Dentin Bonding area, J Dent Res, 72:1434-1442, 1993.

64. Van Meerbeek B. et. al. : Correlative Transmission Electron Microscopy Examination of Nondemineralized and Demineralized Resin-Dentin Interfaces Formed by Two Dentin Adhesive Systems, J Dent Res, 75:879-888, 1996.

65. Van Meerbeek B., Eick J.D., Robinson S.J. : Epoxy-embedded versus nonembedded TEM examination of the resin-dentin interface, J Biomed Mater Res, 35:191-197, 1997.

66. Van Meerbeek B. et. al. : A TEM Study of Two Water-based Adhesive Systems Bonded to Dry and Wet Dentin, J Dent Res, 77:50-59, 1998.

67. Watson T.F., De Wilmot D.M. : A confocal microscopic evaluation of the interface between Syntac adhesive and tooth tissue, J Dent, 20:302-310, 1992.

68. Yoshiyama M. et. al. : Interfacial morphology and strength of bonds made to superficial versus deep dentin, Am J Dent, 8:297-302, 1995.

사진부도 설명

사진부도 1. SBMP를 상아질에 도포한 실험군의 투과전자현미경 사진 (X 13,200)

H : Hybrid Layer DT : Dentinal Tubule

사진부도 2. SBMP를 상아질에 도포한 실험군의 투과전자현미경 사진 (X 57,000)

화살표는 electron-dense한 amorphous phase를 나타낸다.

사진부도 3. ONE-STEP®을 상아질에 도포한 실험군의 투과전자현미경 사진 (X 7,800)

H : Hybrid Layer

사진부도 4. ONE-STEP®을 상아질에 도포한 실험군의 투과전자현미경 사진 (X 42,000)

화살표는 교원섬유의 cross banding을 보여준다.

사진부도 5. Prime & Bond®2.1을 상아질에 도포한 실험군의 투과전자현미경 사진 (X 7,800)

가는 화살표는 접착레진 쪽으로의 projection을 나타내고 굵은 화살표는 레진에 싸인 수산화인회석으로 추측되는 진한 선을 보여준다. DT : Dentinal Tubule

사진부도 6. Prime & Bond®2.1을 상아질에 도포한 실험군의 투과전자현미경 사진 (X 57,000)

화살표는 교원섬유의 cross banding을 보여준다.

사진부도 7. Single Bond를 상아질에 도포한 실험군의 투과전자현미경 사진 (X 7,800)

가는 화살표는 overwet phenomenon으로 보이는 물방울을 나타내고 굵은 화살표는 amorphous phase를 가르킨다.

RT : Resin Tag

사진부도 8. Single Bond를 상아질에 도포한 실험군의 투과전자현미경 사진 (X 17,800)

화살표는 overwet phenomenon을 나타낸다.

사진부도 9. Syntac® SC를 상아질에 도포한 실험군의 투과전자현미경 사진 (X 10,400)

화살표는 레진에 싸인 수산화인회석을 나타낸다.

사진부도 10. Syntac® SC를 상아질에 도포한 실험군의 투과전자현미경 사진 (X 57,000)

화살표는 상아세관의 측면가지를 가르킨다.

사진부도 11. MAC-BOND Ⅱ를 상아질에 도포한 실험군의 투과전자현미경 사진 (X 7,800)

좁지만 균일한 혼성층의 모습을 보인다.

사진부도 12. MAC-BOND Ⅱ를 상아질에 도포한 실험군의 투과전자현미경 사진 (X 146,000)

화살표는 shag carpet appearance를 나타낸다.

사진부도 13. D-Liner Dual PLUS를 상아질에 도포한 실험군의 투과전자현미경 사진 (X 7,800)

화살표는 organic polymer를 나타낸다.

사진부도 14. D-Liner Dual PLUS를 상아질에 도포한 실험군의 투과전자현미경 사진 (X 10,400)

organic polymer가 상아세관까지 들어가 있는 것을 볼 수 있다.

사진부도 15. ONE COAT BOND를 상아질에 도포한 실험군의 투과전자현미경 사진 (X 4,400)

화살표는 amorphous phase를 가르키고 있다.

사진부도 16. ONE COAT BOND를 상아질에 도포한 실험군의 투과전자현미경 사진 (X 7,800)

사 진 부 도

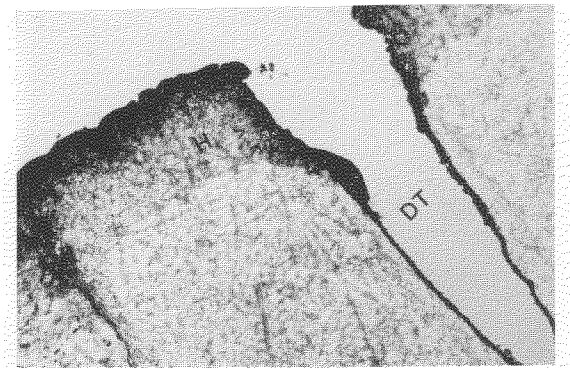

Fig. 1

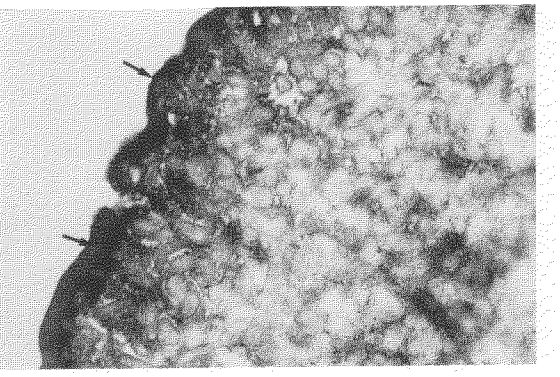

Fig. 2

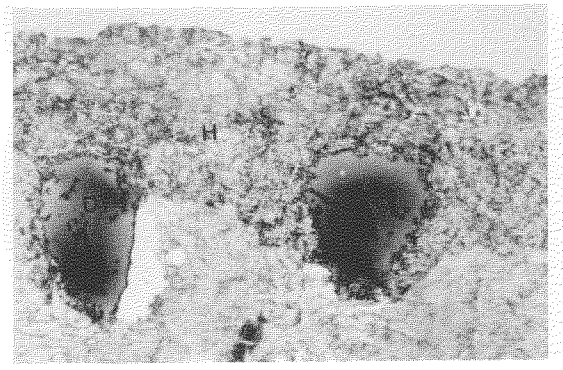

Fig. 3

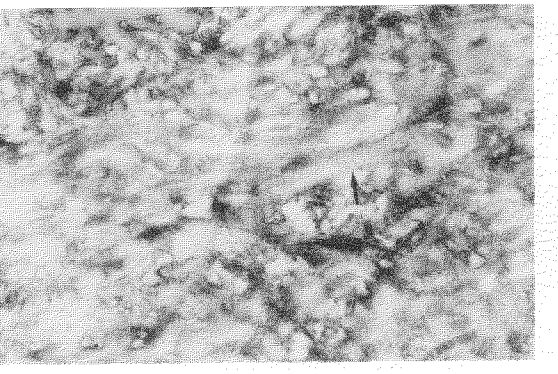

Fig. 4

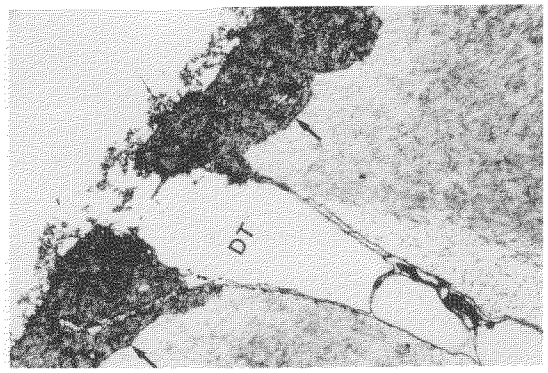

Fig. 5

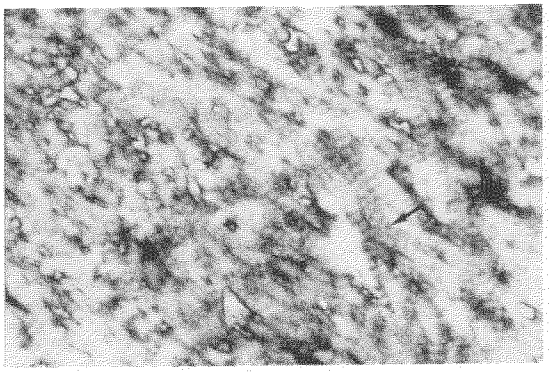

Fig. 6

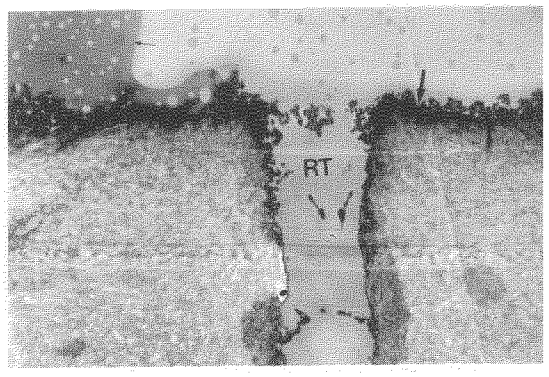

Fig. 7

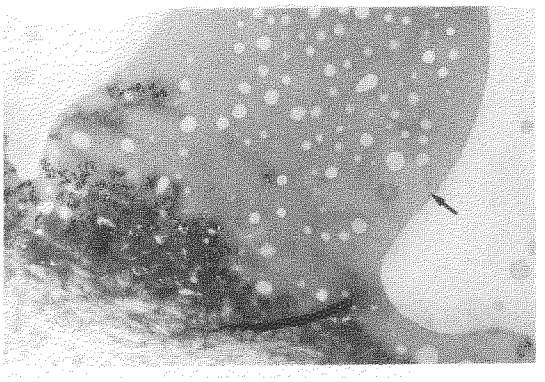

Fig. 8

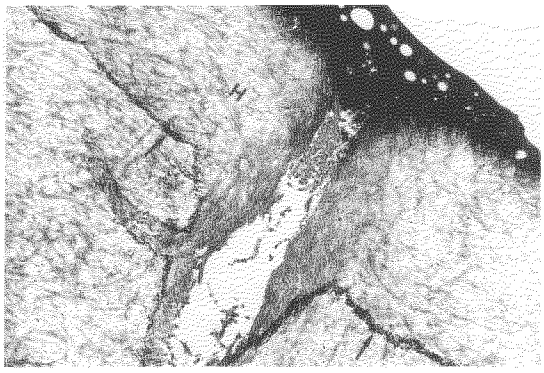

Fig. 9

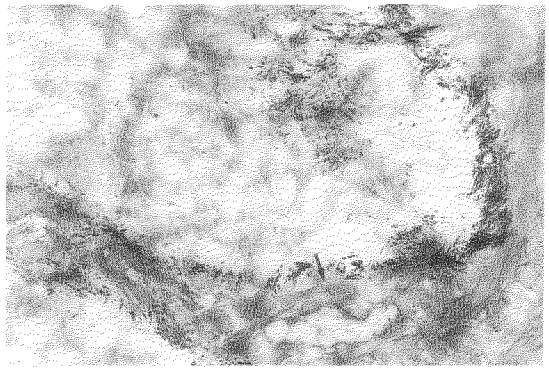

Fig. 10

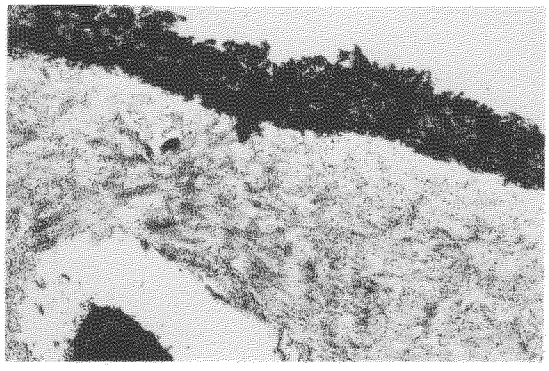

Fig. 11

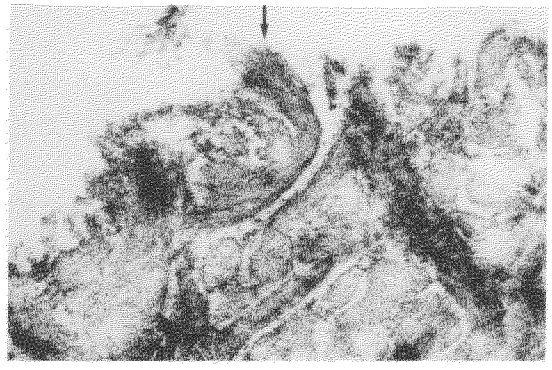

Fig. 12

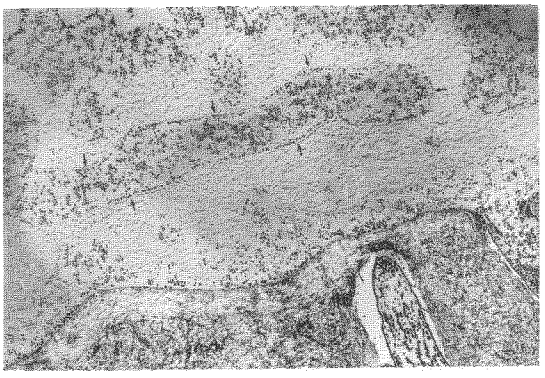

Fig. 13

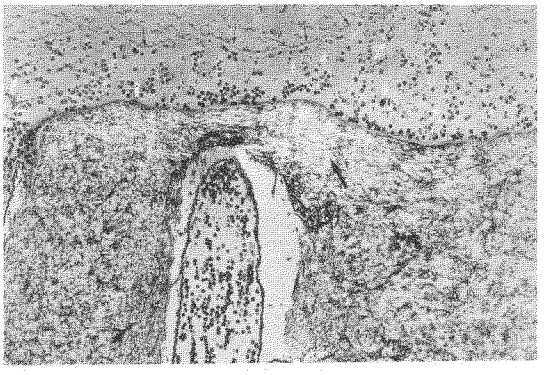

Fig. 14

Fig. 15

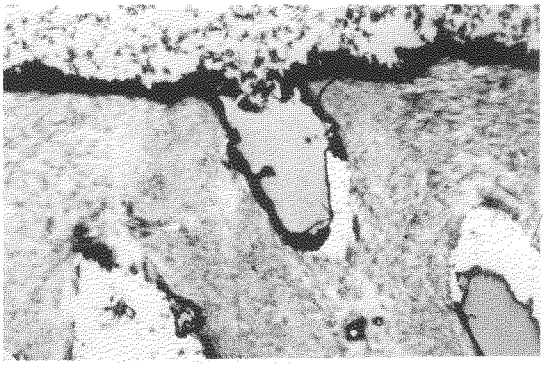

Fig. 16

Abstract

A TEM Study of the Resin-Dentin Interdiffusion Zone Formed by One-Bottle Dentin Adhesive Systems

Dong Woon Yang, D.D.S., M.S.D.

Department of Dentistry, The Graduate School, Yonsei University

(Directed by Professor Chan Young Lee, D.D.S., M.S.D., D.D.Sc.)

One bottle system was recently developed in order to simplify the clinical skills and save chair time after continuous improvements on dentin bonding agents. There has been many studies to measure the bond strength of one bottle systems but no actual work has been done on micromorphologic study of resin-dentin interdiffusion zone after one bottle system application.

To evaluate the bonding patterns of various commercially available one bottle systems to dentin, observation of resin-dentin interdiffusion zone under TEM was performed. Caries-free human third molars within one month of extractions were chosen for the experiments. The molars were sectioned 1㎜ above the cementoenamel junction and got rid of the root portions. Crown portions of the teeth were sectioned parallel to occlusal surface so that dentin discs of 1㎜ in thickness were remained. 7 one bottle systems and 1 two bottle system were applied according to manufacturer's instructions and followings were the results.

1. In every experimental groups, cross bandings of collagen fiber were

distinguishable and tight bondings between the bonding agents and dentin were observed.

2. Hybrid layer was clearly observed in ONE-STEP®, Prime & Bond®2.1, Syntac® SC, MAC-BOND II groups but it was not clear in Single Bond, D-Liner Dual PLUS, ONE COAT BOND groups.

3. Electron-density of hybrid layer was uniform in pattern in MAC-BOND II, Prime & Bond® 2.1 groups but not so uniform in ONE-STEP® group.

4. Electron-dense amorphous phase in most superior layer of the resin-dentin interdiffusion zone was characteristically observed in Single Bond, Syntac® SC, ONE COAT BOND groups.

It can be concluded that bondings between the dentin bonding agents and dentin can be various in pattern according to their chemical compositions and the condition during applications.

Key Words : One-Bottle Dentin Adhesive System, Resin-Dentin Interdiffusion Zone, Hybrid Layer, TEM.