



Universidad Autónoma del Estado de Hidalgo

Instituto de Ciencias de la Salud



Dr. J. Eliezer Zamarripa Calderón
Mtra. Adriana L. Ancona Meza

Trabajo presentado en la **XXXIX Reunión Anual de la Sociedad Argentina de Investigación Odontológica.**

Materiales Dentales

Efecto de la Energía de Polimerización, sobre la Sorción Acuosa y Solubilidad en Composites Envejecidos por UV.

Effect of the Energy Density on Water Sorption and Solubility in Composites with Accelerated Aging.



Efecto de la Energía de Polimerización, sobre la Sorción Acuosa y Solubilidad en Composites Envejecidos por UV.

Área del Conocimiento 3: Medicina y Ciencias de la Salud

The chemical degradation of the organic matrix favored by water sorption and solubility affects the physical and mechanical properties of dental resin composites and could commit the restoration longevity. The objective of this study was to evaluate the water sorption and the solubility in dental resin composites at different times of accelerated aging by UV. Specimens were manufactured with different energy densities. Four commercial dental resin composites were included in the study: F. Z-250, F. Supreme (3M ESPE), Tetric Ceram and Tetric EvoCeram (Ivoclar Vivadent). For each one, 60 specimens were made following the procedure indicated by ISO 4049 Std, divided in three groups: A (3.75 J/cm²), B (9 J/cm²), C (24 J/cm²), and subdivided in: 1(no aging), 2 (500 hours of aging), 3 (1000 hours of aging) and 4 (1500 hours of aging). The results were analyzed by means of ANOVA and Tukey tests ($\alpha = 0.05$) to determine the effect of the factors.

The energy density stops to be relevant factor after 500 h of aging. As the time increases under aging, the water sorption and the solubility decreased. The Water Sorption results were: 0 h (21.5 $\mu\text{g}/\text{mm}^3$), 500 h (17.9 $\mu\text{g}/\text{mm}^3$), 1000 h (18.2 $\mu\text{g}/\text{mm}^3$), 1500 h (15.8 $\mu\text{g}/\text{mm}^3$); the Solubility ones were: 0 h (0.9 $\mu\text{g}/\text{mm}^3$), 500 h (1.0 $\mu\text{g}/\text{mm}^3$), 1000 h (0 $\mu\text{g}/\text{mm}^3$) and 1500 h (-1.3 $\mu\text{g}/\text{mm}^3$).

The conditions of 100% of relative humidity during the process of accelerated aging could favor the saturation of the resin composite with water molecules, so that the values of sorption decrease as a function of time of aging; the polymer degradation formed new hydroxyl groups favoring the retention of water inside the system during the solubility test.

Key words: Energy density, Water sorption, Solubility, Dental Composite. UV, Aging.



Efecto de la Energía de Polimerización, sobre la Sorción Acuosa y Solubilidad en Composites Envejecidos por UV.

Área del Conocimiento 3: Medicina y Ciencias de la Salud

La degradación del material polimérico favorecido por la sorción acuosa y la solubilidad, afecta las propiedades físicas y mecánicas del material utilizado en procedimientos directos en operatoria dental, lo que puede comprometer la longevidad de la restauración. El objetivo de este estudio fue valorar la sorción acuosa y la solubilidad, en probetas sometidas a diferentes tiempos de envejecimiento acelerado por UV, fabricadas con distintas energías de polimerización. Se incluyeron cuatro marcas en el estudio: F. Z-250, F. Supreme (3M ESPE), Tetric Ceram y Tetric EvoCeram (Ivoclar Vivadent). Por cada marca, se fabricaron 60 probetas siguiendo el procedimiento indicado por la norma ISO 40449, se formaron tres grupos utilizando diferente energía de polimerización: A (3.75 J/cm^2), B (9 J/cm^2) y C (24 J/cm^2) subdividiéndolos a su vez en 1 (0 h de envejecimiento), 2 (500 h), 3 (1000 h) y 4 (1500 h); cada subgrupo estaba formado por 5 probetas. Los datos obtenidos se analizaron con ANOVA y prueba de Tukey ($p < 0.05$). La energía de polimerización deja de ser factor determinante después de 500 h de envejecimiento. Conforme aumenta el tiempo bajo UV, la sorción acuosa disminuye: 0 h ($21.5 \mu\text{g/mm}^3$), 500 h ($17.9 \mu\text{g/mm}^3$), 1000 h ($18.2 \mu\text{g/mm}^3$) y 1500 h ($15.8 \mu\text{g/mm}^3$), mostrando el mismo comportamiento la solubilidad: 0 h ($0.9 \mu\text{g/mm}^3$), 500 h ($1.0 \mu\text{g/mm}^3$), 1000 h ($0 \mu\text{g/mm}^3$), 1500 h ($-1.3 \mu\text{g/mm}^3$).

La condiciones de 100% de humedad relativa durante el envejecimiento acelerado, favorecen la saturación del sistema con moléculas de agua por ello la disminución de los valores de sorción; la degradación de la red del polímero formando grupos hidroxilo, evita que el agua dentro del sistema pueda ser eliminada durante la valoración de solubilidad.

Palabras clave: Energía de Polimerización, Sorción Acuosa, Solubilidad, UV



Los fenómenos de la sorción acuosa y la solubilidad en los composites dentales, como se ha descrito en numerosas publicaciones, son factores que generan aumento de la distancia entre las cadenas del polímero y, por lo tanto, responsables de la plasticidad del material y de facilitar la eliminación de monómero residual y oligómeros de pequeño peso molecular, que a su vez posibilitan el desgaste superficial. En una revisión del tema, publicada por Ferracane en este año, menciona que los fenómenos higroscópicos e hidrolíticos que afectan a los materiales poliméricos restaurativos, influyen en las propiedades mecánicas, la estabilidad dimensional y en la biocompatibilidad. Por lo que el objetivo de esta parte del trabajo fue Valorar la sorción acuosa y la solubilidad, en probetas sometidas a diferentes tiempos de envejecimiento acelerado por UV, fabricadas con distintas energías de polimerización. De la misma manera que en los trabajos presentados anteriormente, se analizaron cuatro marcas comerciales de composite fotopolimerizables, dos materiales híbridos: Filtek Z250 y Tetric Ceram y dos con nanorelleno: Filtek Supreme y Tetric EvoCeram.



- ✚ Ortengren U, Wellendorf H, Karlsson S, Ruyter IE. Water sorption and solubility of dental composites and identification of monomers released in an aqueous environment. *J Oral Rehabil* 2001;28(12):1106-15.
- ✚ Sideridou I, Tserki V, Papanastasiou G. Study of water sorption, solubility and modulus of elasticity of light-cured dimethacrylate-based dental resins. *Biomaterials* 2003;24(4):655-65.
- ✚ Toledano M, Osorio R, Osorio E, Fuentes V, Prati C, Garci, et al. Sorption and solubility of resin-based restorative dental materials. *J Dent* 2003;31(1):43-50.
- ✚ Ferracane JL. Hygroscopic and hydrolytic effects in dental polymer networks. *Dent Mater* 2006;22(3):211-22.

Objetivo

Valorar la sorción acuosa y la solubilidad, en probetas sometidas a diferentes tiempos de envejecimiento acelerado por UV, fabricadas con distintas energías de polimerización.

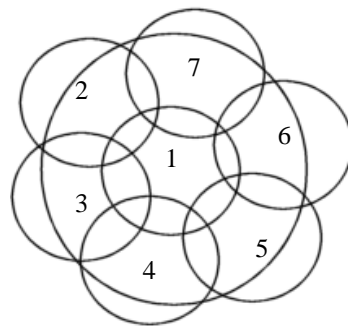
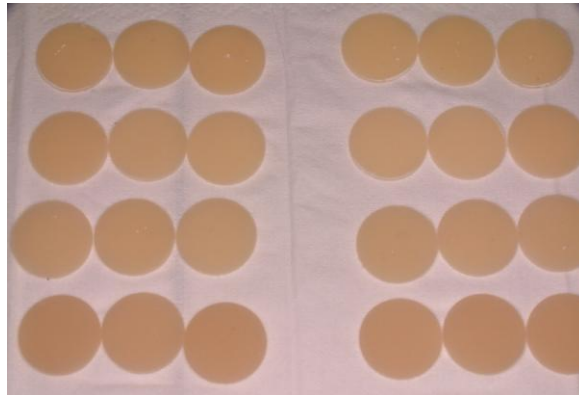
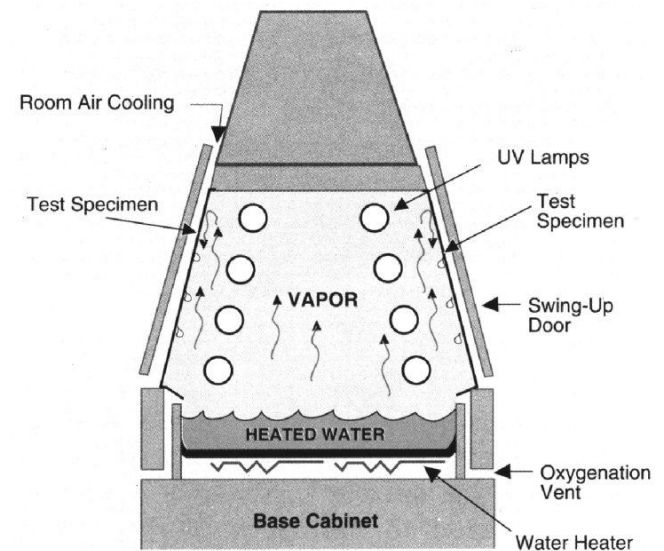


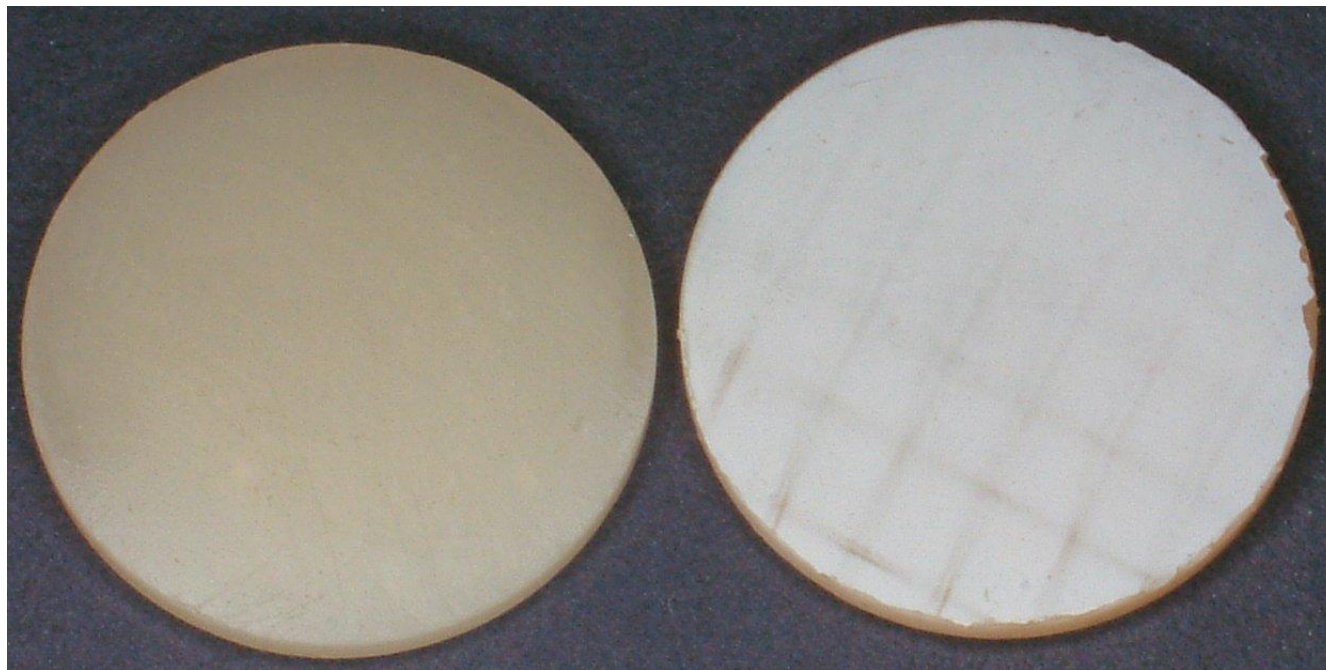
Diagrama esquemático de las zonas de sobre exposición, para la preparación de probetas de sorción y solubilidad.



QUV Cross Section During Condensation Period

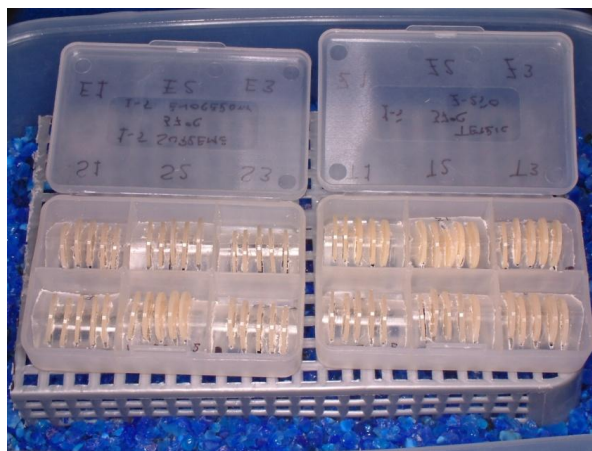


En el punto 7.12 de la norma ISO 4049, se explica la metodología que se ha de seguir para evaluar la sorción acuosa y solubilidad. En un conformador de acero inoxidable de 15 mm de diámetro por 1 mm de profundidad, se elaboraron las probetas en forma de disco que se utilizaron para esta evaluación. La energía de polimerización utilizada fue de acuerdo con los parámetros antes establecidos y, siguiendo las recomendaciones de la norma, la polimerización de cada probeta se inició en el centro y subsecuentemente, se aplicó la energía en seis posiciones más por ambos lados, con el propósito de que no quedara ninguna de sus partes sin una polimerización correcta.





Terminado el ciclo de envejecimiento correspondiente, las cinco probetas de cada subgrupo fueron pulidas con papel abrasivo grano 600 y colocadas en un desecador con gel de sílice a una temperatura de 37 °C. Dos horas antes de las mediciones de masa, como indica la norma se cambiaron a otro desecador que estaba a temperatura ambiente. El gel de sílice de los dos desecadores se reactivaba durante 6 horas a 150 °C cada tres días, con esto se intenta que, el poder secante del gel de sílice se mantenga estable, manteniendo las probetas durante el tiempo del ensayo en condiciones similares.



$$W_{sp} = \frac{m_2 - m_3}{V}$$

$$W_{sl} = \frac{m_1 - m_3}{V}$$



Primero las probetas fueron colocadas en un desecador con sílica gel hasta obtener una masa constante a la cual se denomina m_1 , posteriormente se sumergieron durante 7 días a 37°C en agua destilada y se nuevamente se pesa cada probeta y se denomina m_2 , por último se repite el primer procedimiento de desecado y se obtiene m_3 . Los valores de sorción acuosa y solubilidad se obtuvieron aplicando las fórmulas correspondientes.



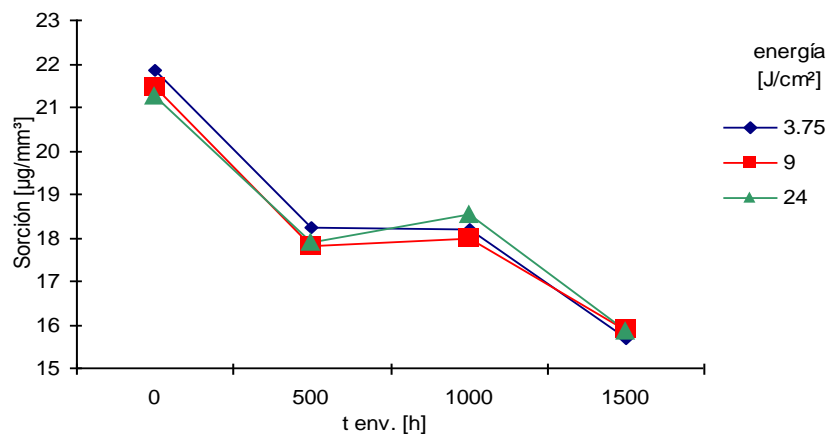
Pruebas de los efectos inter-sujetos

Variable dependiente:

Sorción acuosa

Fuente	Suma de cuadrados tipo III	gl	Media cuadrática	F	Significación
MARCA	2391.70	3	797.23	613.80	0.00
HORAS	1001.15	3	333.72	256.93	0.00
ENERGÍA	1.40	2	0.70	0.54	0.58
MARCA * HORAS	82.45	9	9.16	7.05	0.00
MARCA * ENERGÍA	7.40	6	1.23	0.95	0.46
HORAS * ENERGÍA	8.08	6	1.35	1.04	0.40
MARCA * HORAS * ENERGÍA	48.21	18	2.68	2.06	0.01
Error	249.38	192	1.30		
Total	84907.6863	240			

Cuadro de ANOVA para a variable sorción acuosa



Efecto del envejecimiento por radiación UV, sobre la sorción acuosa, en probetas polimerizadas con diferente energía de polimerización.



Hrs. de envejecimiento	N	<u>Subconjunto</u>		
		1	2	3
1500	60	15.80		
500	60		17.98	
1000	60		18.24	
0	60			21.52
Significación		1.00	0.61	1.00

Prueba de Tukey, para comparar la sorción en grupos con diferentes tiempos de envejecimiento

<i>Marca</i>	<i>N</i>	<i>Coefficiente de correlación</i>	<i>p</i>
Tetric Ceram	60	-0.82	< 0.05
F. Z-250	60	-0.73	< 0.05
F. Supreme	60	-0.82	< 0.05
T. EvoCeram	60	-0.83	< 0.05

Tabla 5.4.6 Correlación: Efecto del tiempo de envejecimiento sobre la sorción acuosa



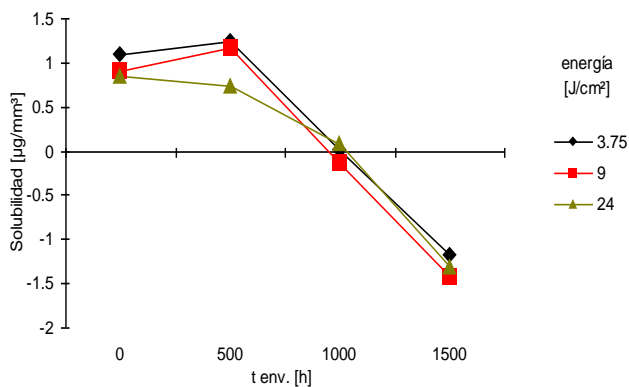
Pruebas de los efectos inter-sujetos

Variable dependiente:

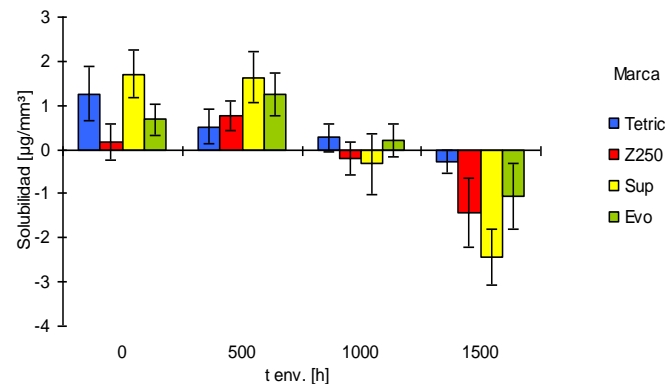
Solubilidad

Fuente	Suma de cuadrados tipo III	gl	Media cuadrática	F	Significación
MARCA	12.29	3	4.10	19.85	0.00
HORAS	214.82	3	71.61	346.95	0.00
ENERGÍA	1.74	2	0.87	4.22	0.02
MARCA * HORAS	59.94	9	6.66	32.27	0.00
MARCA * ENERGÍA	3.00	6	0.50	2.42	0.03
HORAS * ENERGÍA	2.93	6	0.49	2.37	0.03
MARCA * HORAS * ENERGÍA	13.05	18	0.73	3.51	0.00
Error	39.63	192	0.21		
Total	354.2303	240			

Cuadro de ANOVA para la solubilidad



Comportamiento de la solubilidad, analizada por grupos de energía de polimerización.



Comportamiento de la solubilidad, analizada por marca.





Bajo las condiciones de este estudio, la energía de polimerización, con la que se inicia la reacción química, no es un factor que afecte los valores de sorción. Posiblemente, como lo menciona Asaoka otros factores como el coeficiente de difusión, determinado por el tamaño de las probetas o la manera de irradiación. Sin embargo se comprobó la correlación existente entre la sorción acuosa y el tiempo sometido a envejecimiento por radiación UV. Los subgrupos con 500 y 1000 horas de envejecimiento muestran disminución de la sorción acuosa, que se relaciona con el aumento de GC encontrado; se puede justificar la disminución de la sorción de dos maneras: al aumento de la densidad entre cadenas del polímero basándose en el GC encontrado en este estudio, evitando de esta manera que las moléculas de agua difundan dentro del material, o bien a la saturación del material con moléculas de agua, disminuyendo los valores de la sorción en la evaluaciones subsecuentes



Esto surge de lo publicado por Musanje y Darvell en el año 2003, quienes hacen referencia a la importancia del almacenamiento de las probetas, ya que la saturación con agua puede ocurrir con 100% de humedad relativa, condición en que se encontraban las probetas en el equipo de envejecimiento acelerado. La disminución de los valores de solubilidad conforme pasa el tiempo son congruentes con los obtenidos en el estudio publicado por Palin y colaboradores. Hasta el momento, se ha discutido la posibilidad de formación de grupos carboxílicos, durante la experiencia de envejecimiento por radiación UV, relacionándolos con los valores de GC y sorción acuosa. Estos grupos facilitan la integración de moléculas de agua en el sistema. Por esta razón, el aumento de masa, en las probetas valoradas con 1500 horas de exposición a radiación UV es evidente y, de la misma manera, la correlación es significativa.



Solubilidad
DHS de Tukey

Hrs. de envejecimiento	N	Subconjunto		
		1	2	3
1500	60	-1.30		
1000	60		-0.02	
0	60			0.95
500	60			1.05
Significación		1.00	1.00	0.66

Se muestran las medias para los grupos en subconjuntos homogéneos.

Basado en la suma de cuadrados tipo III

El término error es la Media cuadrática (Error) = .206.

a Usa el tamaño muestral de la media armónica = 60.000

b Alfa = .05.

Subconjuntos homogéneos, en los valores de solubilidad, analizados por tiempo de exposición a la radiación UV.

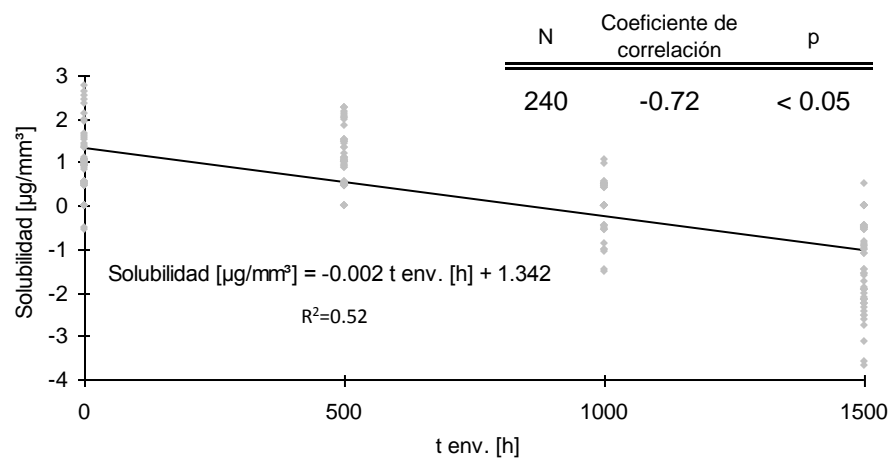
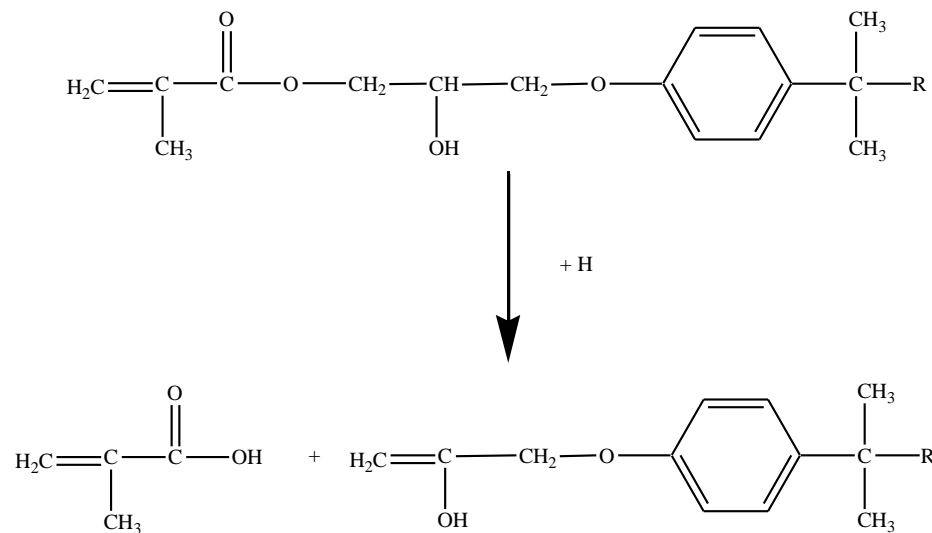


Fig. 5.4.9 Correlación y regresión lineal entre solubilidad y tiempo de envejecimiento



La condiciones de 100% de humedad relativa durante el envejecimiento acelerado, favorecen la saturación del sistema con moléculas de agua por ello la disminución de los valores de sorción; la degradación de la red del polímero formando grupos hidroxilo, evita que el agua dentro del sistema pueda ser eliminada durante la valoración de solubilidad.



Generación de dobles ligaduras a partir del grupo pendiente de metacrilato



GRACIAS

Effect of the Energy Density on Water Sorption and Solubility in Composites with Accelerated Aging.

ZAMARRIPA, J. E.*³, ANCONA, A. L.³, D'ACCORSO, N.², MACCHI, R. L. ¹, ABATE, P. F.¹ Dental Materials Department F.O. U.B.A¹ – Organic Chemistry Department F.C.E.y N. U.B.A.² Dentistry Department I.C.Sa. U.A.E.H.³

Contacto: eliezerz@uaeh.edu.mx