

DESARROLLO DE NUEVAS FORMULACIONES DE COMPOSITOS DENTALES

Lic. Yaymarillis Veranes Pantoja, Investigadora Auxiliar.

Departamento de Cerámicas y Composites, Centro de Biomateriales, Universidad de la Habana,
Ciudad de La Habana, Cuba.

19 de diciembre de 2007.

TRABAJO PRESENTADO EN OPCIÓN AL GRADO CIENTÍFICO DE DOCTOR EN CIENCIAS QUÍMICAS.

La *caries* dental es una de las enfermedades más difundidas en la humanidad. Esta enfermedad es el resultado de una infección bacteriana causada por diversos factores, tales como las características del tejido dentario hospedero, la dieta y la higiene de cada individuo.

Desde tiempos remotos el hombre ha enfrentado el problema de la pérdida de tejido dental por caries y, consecuentemente, la necesidad de mantener la mayor eficiencia posible en la masticación mediante la reposición de la pérdida física por algún material capaz de realizar la función del diente. El material más utilizado con esta finalidad ha sido la amalgama de plata, de la cual aparecen los primeros reportes desde el año 659 d.c. Las principales características favorables para tal fin son su elevada resistencia físico mecánica y bajo costo. No obstante, presenta algunas desventajas tales como, su aspecto antiestético y su posible toxicidad, inconveniente que sigue siendo tema de amplios debates.

Actualmente, los composites dentales o resinas compuestas, como también se conocen, forman parte de los materiales alternativos a las amalgamas que complacen las exigencias estéticas del paciente. Las restauraciones con resinas se realizan con menor sacrificio del tejido dental sano. Sin embargo, sus propiedades físico mecánicas son inferiores a las de las amalgamas, a pesar de la profundización de los trabajos de investigación dirigidos a su mejoramiento.

La incorporación de partículas inorgánicas a la matriz polimérica del composite reduce la contracción propia de la polimerización y la absorción de agua, además de aportarle mayor dureza, resistencia al desgaste y estabilidad del color. La influencia del relleno inorgánico sobre el comportamiento físico del composite está estrechamente relacionada con su geometría, tamaño y estado físico.

Entre los factores determinantes para lograr buena calidad en los composites, está el acoplamiento del relleno con la matriz orgánica. El método más utilizado para alcanzarlo es el tratamiento del relleno con agentes de acoplamiento, generalmente silanos, mediante un proceso que se realiza en dos pasos. Algunos autores sugieren la denominada silanización en un solo paso mediante la incorporación directa del γ -metacriloxipropiltrimetoxisilano (MPS) a la matriz. Se ha demostrado que este tratamiento es tan eficaz como el inicialmente mencionado, en cuanto a lograr la unión necesaria entre la matriz y el relleno. Sin embargo, su empleo afecta algunas propiedades físico mecánicas del material y, además, se reporta una menor conversión en la reacción de polimerización de la matriz. El primero de los métodos resulta complejo y el otro afecta algunas propiedades de las resinas compuestas.

Según datos de la Dirección Nacional de Estomatología, la demanda nacional de las resinas compuestas es de aproximadamente 10 000 estuches por año, lo que representa un total de 280 kg, para realizar cerca de 2 000 000 obturaciones en tal periodo, lo cual no sólo repercute en el factor estético, sino también, en la salud bucal de la población. Debido a la repercusión social que tiene la aplicación de las resinas compuestas y los problemas científicos aún sin resolver en la preparación de estos materiales, el tema de investigación resulta atractivo y muy actual.

En el presente trabajo, se desarrollaron y caracterizaron nuevos composites, utilizando diferentes matrices monoméricas y rellenos inorgánicos con vistas a su aplicación odontológica, para lo cual se evaluó la utilización de diferentes minerales cubanos y aerosil como rellenos y una nueva matriz monomérica compuesta por Bis-GMA/TEGDMA/MPS (2,2-bis-[*p*-(2-hidroxi-3-metacriloxipropoxi)fenil]propano/dimetacrilato de tetraetilenglicol/ γ -metacriloxipropiltrimetoxisilano). Los resultados se compararon con los obtenidos para resinas compuestas preparadas con los mismos rellenos y las matrices Bis-GMA/TEGDMA y Bis-GMA/MPS.

Como rellenos de las resinas compuestas se estudiaron cuatro minerales cubanos, cuarzo de los yacimientos "El Cacahual" y "Santa Lucía", caolín de la Isla de la Juventud y sheridanita de Holguín, y dos sílices pirogénicas (DT4 y 200) producidas por DEGUSSA. SA (Alemania). Para su evaluación, se realizó análisis químico, espectroscopia infrarroja, difracción de rayos X, microscopia electrónica de barrido. Se les determinó además, el área superficial por el método de BET, blancura de los minerales y la distribución del tamaño de partículas.

Utilizando los minerales y sus combinaciones con las sílices pirogénicas y las matrices antes mencionadas, se prepararon las diferentes formulaciones de composites dentales, a los que se les determinó la profundidad de curado, absorción y solubilidad en agua según la norma ISO 4049. Se evaluaron propiedades mecánicas tales como módulo de elasticidad (E), resistencias a la compresión (Rc), a la compresión diametral (Rcd), y al desgaste, según los procedimientos descritos en la norma ISO 604.

Para el curado de los materiales fotopolimerizables, se emplearon dos lámparas de luz halógena: (Visilux 2 y Spectrum 800, Dentsply, Alemania), ambas de la casa comercial 3M. El tiempo de irradiación para las mezclas monoméricas fue 20 s y para los composites 40 s por ambas caras, excepto para el ensayo de profundidad de curado en que solo se irradiaron las probetas por una de las caras. Cada diez exposiciones, se comprobó que la densidad de potencia de la lámpara sobrepasara los 600 mW/cm² mediante un radiómetro incorporado a la lámpara.

Se realizó el estudio fotocolorimétrico de algunas de las formulaciones para caracterizar el comportamiento cinético de la fotopolimerización de los monómeros presentes en la matriz, bajo irradiación y determinar el grado de conversión del monómero a polímero en un tiempo dado, pues mientras mayor sea este, menor resulta la toxicidad del material. La cinética de polimerización de

los composites, se estudió mediante la irradiación directa de estos en un fotocalorímetro. El calor desprendido durante la polimerización, se relaciona con el grado de conversión de monómero a polímero y el grado de conversión se determinó mediante la relación entre el calor liberado a un tiempo t (ΔH_t) y el calor total de polimerización (ΔH_0).

Se determinó la radiopacidad (ISO 4049) de nueve formulaciones preparadas con la matriz Bis-GMA/TEGDMA/MPS y como relleno híbrido una mezcla de cuarzo del yacimiento "El Cacahual" y aerosil DT-4. Los agentes radiopacos fueron circón ($ZrSiO_4$) y circona (ZrO_2). Se analizó el color de los composites por comparación con la guía de colores CHOMASCOP de la casa comercial 3M siguiendo el mismo procedimiento empleado por los estomatólogos para elegir el color del material que se utiliza en la restauración.

Los resultados fueron procesados estadísticamente por comparación de medias y varianzas empleando los estadígrafos "t" de Student y "F" de Fisher con un 99 % de confianza, con el programa Statgraphics Plus 5.5.

De los minerales cubanos estudiados, las dos muestras de cuarzo son las que cumplen con los requerimientos para ser usados como relleno, siendo el de "El Cacahual" el más adecuado. Además, se logró un relleno híbrido con aerosil 200, que le confiere al composite mejores propiedades mecánicas. Se descartó el uso del caolín atendiendo a las bajas propiedades mecánicas y la sheridanita debido a la inadecuada coloración de los composites preparados con este mineral.

Aunque la presencia de γ -MPS disminuye la velocidad inicial de la fotopolimerización, el comportamiento de este sistema bajo irradiación garantiza su fraguado en tiempo clínico llegando en algunos casos a conversiones comparables a las de sistemas donde se emplean diluyentes "clásicos". Al introducir aerosil se nota una disminución de este parámetro que puede ser debida tanto a la presencia de este diluyente como a los agregados de este relleno, lo que puede influir desfavorablemente sobre la profundidad de curado del material.

Se propuso una nueva composición para la matriz monómera (Bis-GMA/TEGDMA/MPS), teniendo en cuenta que no se encontraron evidencias de la efectividad del tratamiento superficial de los rellenos mediante la silanización en *dos pasos* y que la introducción del MPS como diluyente de las resinas compuestas influye favorablemente sobre la compatibilidad entre la matriz orgánica y el relleno. Aspecto que se evidencia por el análisis de la superficie de fractura en compresión de los composites, donde se observa que en los preparados con la matriz Bis-GMA/TEGDMA, es mayor el número de partículas que han sido arrancadas de la matriz dejando huecos en la estructura del composite. Cuando se analizan los composites preparados con la matriz Bis-GMA/MPS es menor el número de partículas arrancadas, se logra mayor integración del relleno a la matriz. Los composites preparados con la nueva matriz muestran mayor integración de las partículas del relleno con ella, las cuales están más embebidas y manifiestan el mejor comportamiento mecánico.

Los composites con relleno híbrido muestran mayor homogeneidad, en ellos se logra mejor pulido, menor desgaste y similar profundidad de curado, aunque menor resistencia mecánica que los preparados con el relleno convencional.

El mejor de los composites estudiados es la formulación Bis-GMA/TEGDMA/MPS con relleno híbrido cuarzo-aerosil, ya que experimenta el menor desgaste y presenta valores apropiados de profundidad de curado [(2,96 \pm 0,01) mm, **> 2,50**], absorción [(8,7 \pm 1,2) mg/mm³, **\leq 40**] y solubilidad en agua [(1,6 \pm 0,6) mg/mm³, **\leq 7,5**] y resistencia mecánica [(Rc = (157 \pm 15) MPa, **> 130**]; Rcd = (33 \pm 4) MPa, **> 30**; E = (25 \pm 3) GPa, entre **18 y 30**. (*En negrita los valores exigidos por las normas para cada propiedad*). Debido a su resistencia mecánica, es una formulación indicada para la restauración de dientes anteriores y se recomienda que pase a la fase de ensayo preclínico.

La introducción de nanopartículas de óxido y silicato de circonio en los rellenos, propicia un adecuado nivel de radiopacidad para el diagnóstico clínico. Los mayores valores de radiopacidad se obtienen cuando se utiliza el óxido, pero estas formulaciones no pueden usarse directamente porque no se logra una distribución adecuada de las partículas del agente radiopaco en la matriz, ni una coloración que le permita el uso clínico. La mejor formulación es la que contiene 10 % de silicato de circonio ya que presenta radiopacidad y color adecuados.

La novedad del trabajo radica en el uso de la nueva matriz Bis-GMA/TEGDMA/MPS en la preparación de las resinas compuestas. De esta matriz no se encuentran reportes y en ella, se sustituye parcialmente el diluyente por el silano metacrílico, de manera tal que funcione preferentemente como agente de acoplamiento para obtener composites dentales con mejores propiedades sin tratamiento previo del relleno. Con ella se logra que la superficie del relleno sea más compatible, que este se embeba mejor en ella y disminuyan los efectos negativos que ocasiona la inclusión directa del silano en la matriz. Otro aspecto novedoso del trabajo es la evaluación del cuarzo del yacimiento "El Cacahual", mineral cubano con adecuada pureza que le permite ser usado como relleno de resinas compuestas.

La tesis abarcó 116 páginas con 16 tablas y 50 figuras. Recoge los aspectos de mayor interés en la preparación y evaluación de resinas compuestas de posible aplicación como obturantes dentales. En la introducción, se refieren aspectos generales del tema, problema científico, hipótesis y objetivos que se persiguen en el trabajo, así como su novedad. Consta de tres capítulos. El primero comprende la revisión bibliográfica, con los antecedentes y estado del arte en el tema de las resinas compuestas para restauraciones dentales, así como los cambios fundamentales que han ocurrido en su composición desde su surgimiento. En el segundo, se describen las técnicas experimentales y materiales usados y en el tercero, se presentan y discuten los resultados más interesantes de los rellenos, matrices y formulaciones estudiadas. Presenta además, conclusiones, recomendaciones y 160 referencias bibliográficas, de las cuales, el 40 % corresponde al período 2000 a 2006, el 34 %, 1994 a 1999 y 17 %, 1988 a 1993), un glosario y anexos. En estos últimos, se refieren datos de interés sobre los estudios realizados a los rellenos y los composites preparados y la producción científica del autor, que comprende 10 publicaciones en revistas nacionales e internacionales, entre las que se pueden citar: Journal Latin American Applied Research, Revista del Ilustre Consejo General del Colegio de Odontólogos y Estomatólogos de España, Revista Cubana de Química, Revista de Minería y Geología y Revista CENIC Ciencias Químicas, cinco artículos a texto completo en anales eventos (VI Congreso Latinoamericano de Órgãos Artificiais e Biomateriais, VI y VII Congresos de la Sociedad Cubana de Bioingeniería). Se cuenta con más de 25 presentaciones en encuentros científicos nacionales e internacionales y reconocimientos en tres de ellos.

Parte de esos resultados, se han introducido en el tema Obturantes y sellantes dentales del curso de postgrado de Biomateriales II que imparte el Centro de Biomateriales de la Universidad de la Habana dentro de la maestría de Ciencia de los Materiales y han permitido a la autora la obtención de tres sellos (distinciones) "Forjadores del Futuro" que otorgan las Brigadas Técnicas Juveniles y la formación de tres licenciados en Química y un técnico medio en Química. Finalmente, cabe señalar que es la primera tesis de doctorado que se defiende en el país en el tema de los obturantes dentales y es el antecedente de diversos trabajos que pueden realizarse en aras de poder contar con una resina compuesta de producción nacional.