

含聚合颗粒的牙科用复合树脂的摩擦学特性

任靖日¹, 赵德金¹, 金教汉²

(1. 延边大学理工学院 机械系, 吉林 延吉 133002;

2. 庆北大学口腔学院 生物材料研究室, 韩国 大邱 702-701)

摘要: 采用含有 Metafil Silux plus, Heliomolar 以及 Palfique estelite 4 种已聚合颗粒的牙科用复合光敏树脂材料, 对其颗粒含量、复合树脂的断裂韧性以及表面硬度进行了测量, 并在球-面往复摩擦磨损试验机上考察了 4 种复合光敏树脂材料在 37 蒸馏水润滑下的摩擦磨损特性。结果表明: Metafil 具有最低的颗粒体积分数和最高的摩擦系数, Palfique estelite, Heliomolar 和 Silux plus 的摩擦系数均较低; Palfique estelite 和 Silux plus 的颗粒体积分数较高, 且具有较高的断裂韧性、硬度以及较好的耐磨性; 含有 30~60 μm 的球状已聚合颗粒的复合树脂的断裂韧性最高, 且颗粒含量愈高, 其断裂韧性愈大, 耐磨性愈好。复合树脂的磨损机理主要表现为已聚合颗粒的脆性破裂引起的磨粒磨损。

关键词: 复合树脂; 聚合颗粒; 断裂韧性; 摩擦磨损性能

中图分类号: TG174.12

文章标识码: A

文章编号: 1004-0595(2002)06-0458-04

随着生活水平的不断提高和美容需要的日益增长, 牙科美容技术和方法获得了很大进步。牙科用复合树脂具有颜色与牙齿相近、美观以及色泽清晰逼真等特点, 因而在修复牙齿的外伤或龋齿等方面得到了广泛应用^[1,2]。但复合树脂存在着聚合收缩性大、耐压和抗拉强度低以及耐磨性差等缺陷。为了改善复合树脂的聚合收缩性、降低辐射透明性、提高抗拉强度和耐磨性等, 人们针对复合树脂颗粒的大小、形状、分布、密度及混合方法等^[3,4]进行了大量研究, 而有关其摩擦学特性等的研究较少。为此, 本文作者针对含有 4 种已聚合颗粒的牙科用复合光敏树脂的断裂韧性和摩擦学特性开展了相关研究, 以便为开发牙用新型高性能树脂基复合材料积累试验数据。

1 实验部分

1.1 试样制备

采用日本大阪 Sun Medical 有限公司生产的含有已聚合颗粒的商品 Metafil Silux plus, Heliomolar 和 Palfique estelite 牙科用复合光敏树脂材料制备试样; 其中已聚合颗粒通过将无机颗粒和树脂聚合后再粉碎而制成。表 1 列出了各复合树脂的组成。将复合树脂试样填满 $\phi 5 \text{ mm} \times 1 \text{ mm}$ 的金属凹槽(如图 1), 用美国产 Powerlite 100 型光辐射仪辐射 30 s, 然后置于 37 蒸馏水中恒温放置 24 h, 再依次用 800[#]、

表 1 各试样的化学成分

Table 1 Chemical compositions of specimens %

Specimen	O	Na	F	Al	Si	Zr	Yb
Metafil	52.72	-	-	1.17	46.11	-	-
Silux plus	50.23	-	-	1.15	48.63	-	-
Heliomolar	28.05	-	1.03	1.45	35.78	-	33.68
Palfique estelite	44.17	2.03	-	1.28	35.55	16.97	-

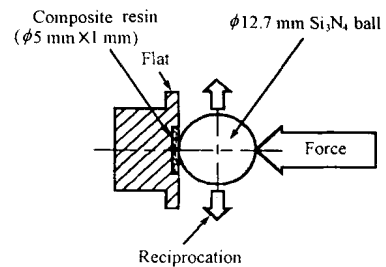


Fig 1 Schematic illustration of ball on flat frictional pair

图 1 球-面摩擦副接触示意图

1 000[#]、1 200[#] 和 1 500[#] 防水砂纸磨削至表面粗糙度 R_a 为 0.1 μm 。

1.2 颗粒含量测定

利用扫描电子显微镜(SEM)观察各试样表面的显微组织, 按第 4049 号国际标准方法^[5]测定复合树脂中颗粒的体积分数, 先将各试样制备成 2.5 mm \times 5.0 mm \times 20.0 mm 的矩形试块, 称量测定其质量,

然后置于电炉中加热至 600 并保温 30 min, 得到无机物颗粒残渣; 测定其质量, 进而计算得到颗粒体积分数 相关试验数据均为 3 次试验结果的平均值

1.3 硬度和断裂韧性测定

利用 Shimadzu H MV -200 型硬度计, 在 1.96 N 载荷下测定各试样的维氏硬度, 载荷保持时间 15 s 将各试样制成单边开口为 0.45~ 0.55 mm、尺寸为 25.0 mm × 5.0 mm × 2.5 mm 的矩形条并固化, 在 Instron 4202 型万能测试仪器(美国 Instron Corp)上, 采用 3 点挠度测试方法和 0.1 mm/min 的压缩速度逐渐加大载荷, 测定试样断裂时的最大临界载荷, 按以下公式计算断裂韧性:

$$K_{IC} = K_Q = \frac{P_Q \times S}{B \times W^{3/2}} \times f(a/W) \quad (1)$$

式中: P_Q 为最大载荷, S 、 B 、 W 分别为试样跨度、厚度和高度, a 为试样槽口的长度

1.4 摩擦磨损试验

摩擦磨损试验在自制的往复直线运动摩擦磨损

试验机上进行, 采用如图 1 所示的球-面摩擦副接触方式, 上试样为 $\phi 2.7$ mm 的 Si_3N_4 陶瓷球 由于人的咀嚼力随年龄、性别、健康状态及食物种类而变化(一般在 9.8~ 39.2 N 之间变化), 本试验采用 37 蒸馏水作为润滑剂, 以载荷 9.8 N、振幅 2 mm 和往复滑动速度 50 mm/min 下的摩擦磨损试验模仿人咀嚼试验 用测力传感器检测摩擦力, 并由计算机计算摩擦系数 所有试样经丙酮超声清洗之后, 采用 Mitutoyo Surf-500 型表面形貌仪和面积计测定磨痕端面曲线和截面积, 并计算磨损体积损失和磨损率 所有试验数据均为 3 次试验结果的平均值 用扫描电子显微镜 (SEM) 观察磨痕形貌和表面显微组织

2 结果与讨论

2.1 显微组织、颗粒、硬度和断裂韧性的关系

图 2 所示为各试样表面形貌的 SEM 照片 可见, 颗粒的分布以及颗粒与树脂之间的结合状态因树脂材料的不同而不同 其中 Palfique estelite 的结合状

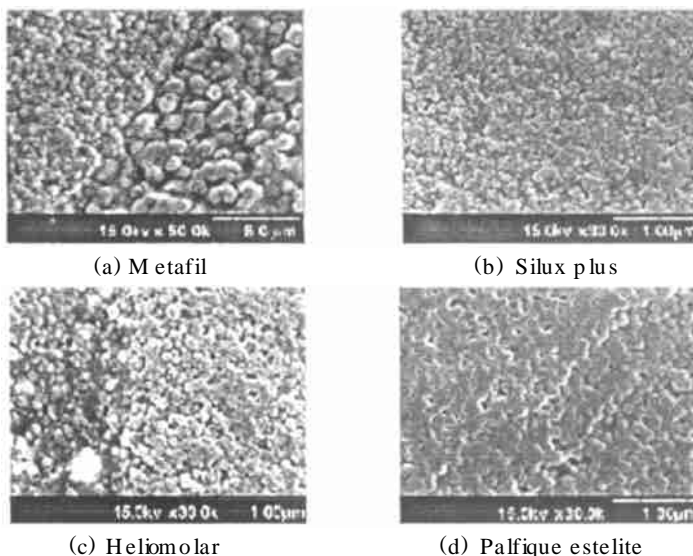


Fig 2 SEM photographs of ground surface of specimens

图 2 各试样的研磨表面形貌 SEM 照片

态较好 表 2 列出了各试样的颗粒体积分数、硬度和

表 2 各试样的颗粒含量、硬度和断裂韧性

Table 2 Filler fractions, Vickers hardness and fracture toughness of specimens

Specimen	Q%	Hardness HV	$K_{IC}/MPa \cdot m^{1/2}$
Metafil	25.7	48.18	0.63 ± 0.01
Silux plus	37.1	63.18	0.81 ± 0.07
Heliomolar	41.2	54.31	0.84 ± 0.02
Palfique estelite	51.1	71.74	0.85 ± 0.01
Si_3N_4	-	1562.00	-

断裂韧性 可见试样 Metafil 的颗粒体积分数最低, 试样 Palfique estelite 的颗粒体积分数最高; Palfique estelite 的硬度最高, Silux plus 和 Heliomolar 的硬度次之, Metafil 的最低, 硬度主要受颗粒体积分数和颗粒组成的影响; Palfique estelite 的断裂韧性最高, Metafil 的最低, 断裂韧性随着颗粒含量的增加而提高^[6].

2.2 摩擦磨损特性

表 3 列出了各试样的平均摩擦系数和磨损率 可见: 硬度和断裂韧性最低的 Metafil 复合材料的摩擦

表 3 各试样的平均摩擦系数和磨损率

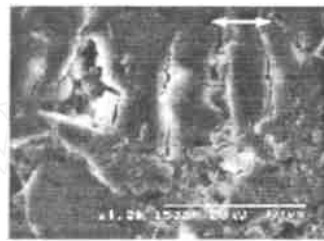
Table 3 Average friction coefficient and specific wear rate of specimens

Specimen	Friction coefficient	Specific wear rate / $10^{-5} \text{ mm}^3 \cdot (\text{Nm})^{-1}$
Metafil	0.67	7.32
Silux plus	0.51	5.56
Heliomolar	0.52	5.67
Palfique estelite	0.50	5.48

系数最高; Metafil 的磨损率最高, 而 Silux plus 和

Palfique estelite 的耐磨性较好. 这表明颗粒的含量、硬度和断裂韧性对耐磨性影响很大. 随着颗粒含量增加, 断裂韧性提高, 耐磨性改善. 已聚合颗粒愈大, 基体与已聚合颗粒之间的界面愈容易破裂, 磨损越大.

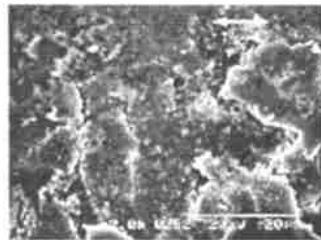
图 3 示出了经 9 000 次循环(滑动距离为 36 m)后各试样的磨损表面形貌 SEM 照片. 可见: Metafil 磨损表面沿垂直于滑行方向出现裂纹和颗粒脱落, 这是由于在反复循环压应力和拉应力作用下磨损表面沿颗粒与树脂基体界面强度较弱的方向发生破坏所



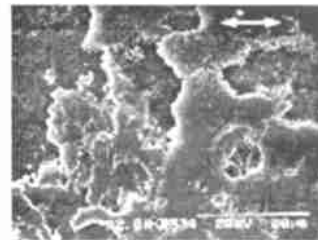
(a) Metafil



(b) Silux plus



(c) Heliomolar



(d) Palfique estelite

Fig 3 SEM photographs of worn surface of specimens

图 3 各试样的磨损表面形貌 SEM 照片

致 Silux plus 磨损表面已聚合颗粒之间形成微小裂纹, 并发生少量颗粒脱落. Heliomolar 磨损表面形成大量裂纹, 已聚合颗粒破裂及较大颗粒脱落加剧. 而 Palfique estelite 磨损表面亦可见已聚合颗粒的剥离和脱落迹象.

3 结论

a Metafil 复合树脂的颗粒体积分数最低, 其同 Si_3N_4 陶瓷球对摩时的摩擦系数最高, Palfique estelite、Heliomolar 和 Silux plus 的摩擦系数较低.

b Palfique estelite 和 Silux plus 复合树脂的颗粒体积分数较高, 在同样试验条件下具有较高的断裂韧性和硬度, 同时具有较好的耐磨性. 复合树脂的断裂韧性随颗粒含量的增加而提高.

c 复合树脂同 Si_3N_4 陶瓷球对摩时的磨损机理主要表现为由已聚合颗粒的脆性破裂引起的磨粒磨损.

参考文献:

- [1] Bayne S C, Heymann H O, Swift E J. Update on dental composite restorations, [J]. Am Dent Assoc, 1994, 125: 687-701.
- [2] Gao C Z (高承志), Wang X Z (王新知), Cao Y H (曹越辉), et al. Study on The Color Difference of Light-cured Composite Resins and Attached Shade Guides (光敏树脂比色板的色度学研究) [J]. Journal of Beijing Medical University (北京医科大学学报), 1998, 30 (6): 532-534.
- [3] Li H (黎红), Zhou Z R (周仲荣), Zhang J (张杰), et al. (天然牙及几种牙科修复材料的摩擦磨损性能比较研究) [J]. Tribology (摩擦学学报), 2001, 21 (3): 172-175.
- [4] 森五郎. JIS ハンドブック 色彩 [M]. (东京) 日本规格协会, 1994. 262-267.
- [5] International Organization for Standardization: ISO 4049: Dentistry resin-based filling materials, 1988.
- [6] Kim K H, Park J H, Imai Y, et al. Fracture Behavior of Dental Composite Resins [M]. Biomater Eng, 1991. 45-46.

Tribological Behavior of Dental Composite Resins Containing Pre-polymerized Particle Fillers

REN Jing-ri¹, ZHAO De-jin¹, KM Kyo-han²

(1. Department of Mechanical Engineering, Yanbian University, Yanji 133002, China;

2. Department of Dental Biomaterials, Kyungpook National University, Taegu 702701, Korea)

Abstract: Composite resins specimens made of Metafil, Silux plus, Heliomolar, and Palfique estelite for dental application were prepared by light-curing. The tribological behavior of dental composite resins containing pre-polymerized particle fillers under distilled-water-lubricated sliding against SiN₄ was investigated in a ball-on-plate contact configuration, with an emphasis placed on the effect of pre-polymerized inorganic particulate fillers on the fracture and wear-resistance of the composite resins. The worn surfaces of the composite resins were observed with a scanning electron microscope. It was found that Metafil showed a higher friction coefficient in sliding against the ceramic ball, while Silux plus and Palfique estelite had better wear resistance than Metafil and Heliomolar under the same testing condition. The fracture behavior and wear-resistance of the composite resins depended on the volume fractions of the inorganic particulate fillers therein, which accounted for the different wear-resistance of the composite resins. The composite resins containing pre-polymerized particle fillers were dominated by abrasive wear in sliding against the ceramic ball, which was attributed to the brittle fracture and detachment of the pre-polymerized inorganic particulate fillers in the resin.

Key words: composite resin; pre-polymerization; fracture toughness; friction and wear behavior

Author: REN Jing-ri, male, born in 1960, Ph. D., Professor, E-mail: jrren95@hotmail.com.