

[DOI]10.12016/j.issn.2096-1456.2019.11.004

· 基础研究 ·

# 两种老化方式对玻璃陶瓷与牙本质粘接界面的影响

吴政西<sup>1</sup>, 李风兰<sup>2</sup>

1. 山西医科大学口腔医学院·口腔医院, 山西太原(030012); 2. 山西医科大学附属省人民医院口腔修复科, 山西太原(030012)

**【摘要】** 目的 研究3种树脂水门汀粘接牙本质与玻璃陶瓷时,细菌侵袭和人工唾液浸泡两种老化方式对粘接界面粘接强度及纳米渗漏的影响,为临床选择粘接材料提供参考。**方法** 选取108个牙本质块,分别用Variolink N、Multilink N、RelyX Unicem 3种树脂水门汀粘接剂与玻璃陶瓷瓷块制备粘接试件。每种粘接剂的粘接试件按照不同老化方式分3组:细菌侵袭组(接种变异链球菌后厌氧培养14 d),人工唾液组(人工唾液浸泡6个月),对照为即刻测试组,每组12个试件;每组随机选取6个试件测试粘接强度,6个试件扫描电镜观察界面纳米渗漏情况。**结果** 即刻测试组Variolink N的粘接强度明显高于Multilink N和RelyX Unicem的粘接强度,差异具有统计学意义( $P < 0.05$ );但在人工唾液组和细菌侵袭组3种粘接剂之间的粘接强度差异均无统计学意义( $P > 0.05$ )。细菌侵袭组,3种粘接剂纳米渗漏差异有统计学意义( $P < 0.05$ ),且Variolink N > Multilink N > RelyX Unicem,两两比较差异均具有统计学意义( $P < 0.05$ )。3种树脂粘接剂的纳米渗漏在细菌侵袭组、人工唾液组较即刻测试组均呈增加趋势。**结论** 人工唾液浸泡和细菌侵袭这两种老化方式均可不同程度降低3种树脂水门汀的粘接界面封闭性能。口腔中变异链球菌的存在可能会降低树脂牙本质粘接界面的封闭性能。

**【关键词】** 人工唾液; 变异链球菌; 玻璃陶瓷; 牙本质; 树脂水门汀; 粘接界面; 老化; 纳米渗漏

**【中图分类号】** R783.4 **【文献标志码】** A **【文章编号】** 2096-1456(2019)11-0703-08

开放科学(资源服务)标识码(OSID)

**【引用著录格式】** 吴政西,李风兰.两种老化方式对玻璃陶瓷与牙本质粘接界面的影响[J].口腔疾病防治,2019,27(11):703-710.

**Effect of two aging methods on the bonding interface between glass ceramics and dentin** WU Zhengxi<sup>1</sup>, LI Fenglan<sup>2</sup>. 1. Shanxi Medical University School and Hospital of Stomatology, Taiyuan 030012, China; 2. Department of Prosthodontics, Affiliated People's Hospital, Shanxi Medical University, Taiyuan 030012, China  
Corresponding author: LI Fenglan, Email: uniquefl@163.com, Tel: 86-351-4960444

**【Abstract】 Objective** To study the effects of bacterial invasion and artificial saliva immersion on the bond strength and nanoleakage between healthy dentin and glass ceramics-bonded specimens using three types of resin cements and provide a reference for the selection of clinical bonding materials. **Methods** One hundred eight dentin blocks were selected to prepare bonded specimens with Variolink N, Multilink N, RelyX Unicem and glass ceramics blocks. The adhesive specimens of each type of resin cements were divided into three groups according to the aging method: bacterial invasiveness group (the specimens were cultured under anaerobic conditions for 14 days after inoculation with *Streptococcus mutans*), artificial saliva immersion group (the specimens were immersed in artificial saliva for 6 months), and control group (the immediate test group). Each group comprised 12 specimens: 6 were selected to test the bonding strength, and 6 were observed by scanning field emission scanning electron microscopy (FESEM). **Results** The bond strength of

**【收稿日期】** 2019-05-14; **【修回日期】** 2019-06-10

**【基金项目】** 山西省重点研发计划(指南)项目(201703D321027-2)

**【作者简介】** 吴政西,住院医师,在读研究生,Email: 1149659227@qq.com

**【通信作者】** 李风兰,主任医师,博士,Email: uniquefl@163.com, Tel: 86-351-4960444

Variolink N in the immediate test group was significantly higher than that of Multilink N and RelyX Unicem, and the difference was statistically significant ( $P < 0.05$ ). However, no significant difference was found in the bacterial invasiveness group and artificial saliva immersion group ( $P > 0.05$ ). In the bacterial invasion group, the difference in the nanoleakage of the three adhesives was statistically significant ( $P < 0.05$ ), with a trend of Variolink N > Multilink N > RelyX Unicem, and pairwise comparison was statistically significant ( $P < 0.05$ ). The nanoleakage of the three resin adhesives showed an increasing trend in the bacterial invasion group and artificial saliva group compared with that of the immediate test group. **Conclusion** Both artificial saliva soaking and bacterial invasion can reduce the sealing property of the adhesive interface of 3 types of resin cements to different degrees. The presence of *Streptococcus mutans* in the oral cavity may reduce the sealing performance of the resin dentine adhesive interface.

**【Key words】** artificial saliva; *Streptococcus mutans*; glass ceramics; dentin; resin cement; bonding interface; aging; nanoleakage

**J Prev Treat Stomatol Dis, 2019, 27(11): 703-710.**

玻璃陶瓷因具有良好的半透明性、优良的美学性能、能被酸蚀等特点被广泛用于美学修复,目前树脂水门汀被用于玻璃陶瓷类修复体的粘固<sup>[1]</sup>。近来有研究显示玻璃陶瓷修复体面临着口腔环境中大量的细菌和唾液的挑战,可能会发生粘接界面的老化,从而导致修复失败<sup>[2]</sup>。本实验拟探讨3种树脂水门汀粘接牙本质与玻璃陶瓷时,细菌侵袭和人工唾液浸泡两种老化方式对粘接界面

粘接强度及纳米渗漏的影响,为临床选择粘接材料提供参考。

## 1 材料和方法

### 1.1 材料

3种树脂水门汀: Variolink N、Multilink N (Ivoclar Vivadent, 列支敦士登)以及 RelyX Unicem (3M, 美国), 主要成分及粘接程序见表1。

表1 3种粘接剂的主要成分及操作步骤

Table1 Main components and operating instructions of three resin cements

粘接剂	类型	主要成分	树脂粘接程序
Variolink N	全酸蚀树脂粘接剂	双酚 A 双甲基丙烯酸缩水甘油酯、聚氨酯二甲基丙烯酸酯和三甘醇二甲基丙烯酸酯、无机填料。颗粒大小为 0.04 ~ 3.0 μm, 平均颗粒大小 0.7 μm。	瓷: 5% HF 酸蚀 20 s 后流水冲洗、涂布 Monobond (Ivoclar Vivadent, 列支敦士登) 反应 180 s; 牙本质面: 37% 磷酸酸蚀 < 15 s, 冲洗后, 依次涂布 Primer (Ivoclar Vivadent, 列支敦士登)、Adhesive (Ivoclar Vivadent, 列支敦士登)、Heliobond (Ivoclar Vivadent, 列支敦士登); 试件粘接: 涂布 Variolink N 糊剂、指压固定、光固化 20 s。
Multilink N	自酸蚀树脂粘接剂	二甲基丙烯酸酯、甲基丙烯酸羟乙酯、钽玻璃、氟化铟和混合球型氧化物颗粒。颗粒大小为 0.25 ~ 3.0 μm。平均颗粒大小 0.9 μm。	瓷: 5% HF 酸蚀 20 s 后流水冲洗、涂布 Monobond (Ivoclar Vivadent, 列支敦士登) 反应 180 s; 牙本质表面: 牙釉质牙本质处理剂混合 (1: 1) 处理 15 s 后吹干; 试件粘接: 涂布 Multilink N 糊剂、指压固定、光固化 20 s。
RelyX Unicem	自粘接树脂粘接剂	硅烷化玻璃粉、硅烷处理的二氧化硅、过硫酸钠、含有双功能(甲基)丙烯酸酯。以重量计无机填充物的比例约为 72%, 平均颗粒大小 (D90%) 为 9.5 μm。	瓷: 5% HF 酸蚀 20 s 后流水冲洗、涂布 Monobond (Ivoclar Vivadent, 列支敦士登) 反应 180 s; 牙本质表面: 无需任何处理; 试件粘接: 涂布激活后的 RelyX Unicem 糊剂、指压固定、光固化 20 s。

可切削二硅酸锂玻璃陶瓷(爱尔创口腔科技有限公司);颜色 A2。离体牙:体视显微镜下挑选无隐裂无龋坏的离体第三磨牙 108 颗,清理去除牙周残留软组织(贮存于 4 °C 的 1% 氯氨 T 溶液中, 30 d 内用于实验);人工唾液(信恒科技, 广州);变异链球菌 UA159(空军军医大学惠赠);脑心浸液 (brain heart infusion, BHI) 培养基(海博生物技术有

限公司);胰蛋白胍水解物-酵母提取物-半胱氨酸-蔗糖-杆菌肽 (tryptone yeast cystine sucrose bacitracin, TYCSB) 液体培养基(招远生物科技有限公司);万能实验机(英斯特朗, 美国),超净工作台(苏州净化工作台设备有限公司),厌氧培养箱(恒跃医疗器械有限公司)、电热恒温培养箱(精宏实验设备有限公司)。

## 1.2 方法

1.2.1 牙本质块的预备 108颗完整无龋的离体牙在流水冷却下,高速车针去除冠方牙釉质,离釉牙骨质界4 mm,使牙本质充分暴露得到矩形牙本质粘接试件,试件长 $(4.00 \pm 0.05)$  mm,宽 $(4.00 \pm 0.05)$  mm,400、600、800、1 000目耐水砂纸依次打磨牙本质粘接面30 s,制备统一的玷污层,浸泡于4℃的1%氯氨T溶液备用。

1.2.2 瓷块的预备 108块爱尔创可切削玻璃陶瓷瓷块低速切割机流水冷却的情况下切割成4 mm × 4 mm × 10 mm大小的粘接测试试件,瓷块试件用烤瓷炉进行烧结结晶,形成标准件。将所有全瓷试件以400、600、800、1 000目耐水砂纸依次打磨粘接面60 s,超声清洗10 min,备用。

1.2.3 制备粘接试件 按照相应操作规范分别用树脂水门汀Variolink N、Multilink N、RelyX Unicem,将牙本质块与玻璃陶瓷瓷块粘接,制备粘接试件。

1.2.4 分组 通过随机数字表法将每种树脂水门汀粘接试件分为3组。

细菌侵袭组:挑选接种于BHI琼脂平板上生长状况良好(乳白色,圆形、直径约1 mm,稍凸起,表面光滑)、镜检无污染的变异链球菌UA159菌落,将其转至5 mL BHI液体培养基,增菌18~24 h,调整菌悬液OD 600 nm吸光度为0.010,即菌液浓度为 $1 \times 10^7$  CFU/mL,24支安瓿瓶每瓶内加入4.5 mL TYCSB液体培养基和0.5 mL变异链球菌待用菌悬液以及粘接试件1个,稀释后变异链球菌的菌浓度为 $1 \times 10^6$  CFU/mL。厌氧环境下37℃培养14 d。每隔24 h在超净工作台内取出旧安瓿瓶内粘接试件,然后将粘接试件转入到装有变异链球菌初始浓度为 $1 \times 10^6$  CFU/mL菌悬液的新安瓿瓶内,无菌TYCSB液体培养基定容至5 mL后置入厌氧培养箱内继续培养。

人工唾液组:取5 mL人工唾液加入24支安瓿瓶中,同时放入粘接试件,做好标记,封口后放于恒温培养箱中培养6个月,每周更换1次人工唾液。

即刻测试组:取5 mL蒸馏水放置于24支安瓿瓶中,同时放入粘接试件,做好标记,封口放入恒温培养箱中保存24 h。

1.2.5 粘接强度的测定 用万能材料试验机分别对各组试件进行粘接抗剪切强度的测试。测试时试件置于特制夹具中固定,剪切方向与陶瓷粘接

面相平行,加载速度设定为1.0 mm/min,直至粘接试件粘接面破坏,自动记录此时的剪切力值(N)。根据粘接强度计算公式 $t = P/S$ ,计算每个试件的粘接强度。其中 $t$ 指粘接强度(MPa); $P$ 指粘接破坏的最大剪切力(N); $S$ 指粘接面积( $\text{mm}^2$ )。对每组6个试件所测得的结果取平均值即为其粘接强度。

1.2.6 纳米渗漏测试 室温下于暗室中将25 g硝酸银溶解于25 mL 28%的氢氧化铵溶液中,逐滴加入氢氧化铵液,同时用磁力搅拌器不断搅拌,直至液体清亮。蒸馏水稀释溶液至50 mL,得到50% (M/V)氯化硝酸银液50 mL (pH = 9.5)。将粘接好的试件依次使用400、600、800、1 000、1 200目耐水砂纸依次打磨,冲洗5 min,干燥。试件粘接界面1 mm外区域用速干指甲油涂布两层,待指甲油干燥后置于氯化硝酸银溶液中避光保存24 h。蒸馏水冲洗5 min,荧光灯下显影液中放置8 h,蒸馏水冲洗5 min。定影液中定影4 h,蒸馏水冲洗5 min。依次用30%、50%、70%、90%、100%丙酮溶液梯度脱水。用导电胶将试件固定于柱子上,真空干燥,于扫描电镜背散射模式下观察粘接面银颗粒渗漏情况并照相。将每个试件均分为6等份,选择中间的5个等分点为观察位点,即1个试件选择5个视野。每个试件取1 000倍电镜图像5张进行观察,用Image J计算银染面积,按照银离子沉积面积占视野中总粘接面积的百分比将纳米渗漏分级。0级为无渗漏;1级:渗漏 $\leq 25\%$ ;2级:25% $<$ 渗漏 $\leq 50\%$ ;3级:50% $<$ 渗漏 $\leq 75\%$ ;4级:渗漏 $> 75\%$ 。对每组选取6个试件所测得的30张图片结果进行数据分析。

## 1.3 统计学方法

采用SPSS21.0软件进行数据分析,双因素方差分析粘接剂和老化方式对观察值的影响,多组间比较用方差 $F$ 检验分析,两两比较用LSD- $t$ 法,计数资料以例数 $n(\%)$ 进行描述,统计推断等级资料组间差异用非参数秩和检验, $P < 0.05$ 时差异有统计学意义。

## 2 结果

### 2.1 粘接强度结果

经双因素析因设计方差分析得:粘接剂种类: $F = 12.358, P < 0.001$ ;不同老化方式 $F = 10.315, P < 0.001$ ,说明两个因素对粘接程度均有影响,2种因素存在交互效应( $F = 11.078, P < 0.05$ )。

即刻测试组:3种树脂水门汀粘接强度之间差

异有统计学意义,且 Variolink N 的粘接强度显著高于 Multilink N 和 RelyX Unicem ( $P < 0.05$ ); 而 Multilink N 和 RelyX Unicem 粘接强度之间差异无统计学意义 ( $P > 0.05$ ); 细菌侵袭组: 3 种树脂水门汀的粘接强度之间差异无统计学意义 ( $P > 0.05$ ); 人工唾液组: 3 种树脂水门汀的粘接强度之间差异无统计学意义 ( $P > 0.05$ )。

Variolink N 粘接剂: 3 种处理方式之间差异有统计学意义 ( $P < 0.05$ ), 且即刻测试组显著高于人工唾液组和细菌侵袭组, 而人工唾液组与细菌侵袭组粘接强度之间差异无统计学意义 ( $P > 0.05$ ); Multilink N 粘接剂: 3 种处理方式下粘接强度之间差异无统计学意义 ( $P > 0.05$ ); RelyX Unicem 粘接剂: 3 种处理方式下粘接强度之间差异无统计学意义 ( $P > 0.05$ ) (表 2)。

## 2.2 纳米渗漏结果

秩和检验结果显示, 即刻测试组: 3 种粘接剂间差异有统计学意义 ( $P < 0.05$ ), 且纳米渗漏分级

表 2 3 种粘接剂和不同老化方式对各组粘接强度的影响  
Table 2 Effects of the three adhesives and different aging treatments on the adhesion strength of each group

n=6, $\bar{x} \pm s$ , MPa					
粘接剂	即刻测试组	人工唾液组	细菌侵袭组	F	P
Variolink N	8.44 ± 1.18	3.34 ± 2.16 <sup>2)</sup>	2.05 ± 0.68 <sup>2)</sup>	32.413	< 0.001
Multilink N	2.44 ± 1.81 <sup>1)</sup>	2.46 ± 1.02	1.67 ± 0.91	0.677	0.508
RelyX Unicem	2.31 ± 1.66 <sup>1)</sup>	1.92 ± 0.54	1.63 ± 0.97	0.679	0.606
F	29.759	1.609	0.437		
P	< 0.001	0.233	0.654		

注 1) 为与 Variolink N 组比较,  $P < 0.05$ ; 2) 为与即刻组比较,  $P < 0.05$

Multilink N > RelyX Unicem > Variolink N, 两两比较差异均具有统计学意义 ( $P < 0.05$ ); 细菌侵袭组: 3 种粘接剂差异有统计学意义 ( $P < 0.05$ ), 且 Variolink N > Multilink N > RelyX Unicem, 两两比较差异均具有统计学意义 ( $P < 0.05$ ) (表 3); 人工唾液组: 3 种粘接剂差异无统计学意义 ( $P > 0.05$ )。

如表 4 所示, 秩和检验结果显示, 粘接剂分别

表 3 不同老化方式组间纳米渗漏情况分析

Table 3 Analysis of nano leakage among the groups with different aging treatments

								n = 30, n (%)			
老化方式	粘接剂	0级	1级	2级	3级	4级	Z	P	$P_{12}$	$P_{13}$	$P_{23}$
即刻测试	Variolink N	20(66.7)	5(16.7)	5(16.7)	0(0)	0(0)	31.941	< 0.001	< 0.001	0.024	0.008
	Multilink N	0(0)	10(33.3)	15(50.0)	5(16.7)	0(0)					
	RelyX Unicem	8(26.7)	20(66.7)	12(40.0)	0(0)	0(0)					
人工唾液	Variolink N	0(0)	5(16.7)	20(66.7)	5(16.7)	0(0)	5.518	0.063			
	Multilink N	2(6.7)	4(13.3)	11(36.7)	12(40.0)	1(3.3)					
	RelyX Unicem	3(10.0)	11(36.7)	10(33.3)	3(10.0)	3(10.0)					
细菌侵袭	Variolink N	0(0)	0(0)	0(0)	4(13.3)	26(86.7)	68.090	< 0.001	< 0.001	< 0.001	
	Multilink N	0(0)	1(3.3)	8(26.7)	20(66.7)	1(3.3)					
	RelyX Unicem	0(0)	8(26.6)	20(66.7)	2(6.7)	0(0)					

注 P 值为相同处理方式下 3 种粘接剂总体比较;  $P_{12}$  值为相同处理方式下 Variolink N 与 Multilink N 相比;  $P_{13}$  值为相同处理方式下 Variolink N 与 RelyX Unicem 相比;  $P_{23}$  值为相同处理方式下 Multilink N 与 RelyX Unicem 相比

为 Variolink N、Multilink N、RelyX Unicem 时, 3 组纳米渗漏差异均具有统计学意义 ( $P < 0.05$ )。

Variolink N 粘接剂: 即刻测试组 < 人工唾液组 < 细菌侵袭组, 两两比较差异均具有统计学意义 ( $P < 0.05$ )。

Multilink N 粘接剂: 即刻测试组 < 人工唾液组 < 细菌侵袭组, 两两比较, 细菌侵袭组较即刻测试组纳米渗漏值显著增加, 且差异具有统计学意义 ( $P < 0.05$ ), 其余两两比较差异不具有统计学意义 ( $P > 0.05$ )。

RelyX Unicem 粘接剂: 即刻测试组 < 人工唾液组 < 细菌侵袭组, 相较于即刻测试组, 细菌侵袭组和人工唾液组纳米渗漏值显著增加, 且差异具有

统计学意义 ( $P < 0.05$ ), 但是人工唾液组和细菌侵袭组之间的差异不具有统计学意义 ( $P > 0.05$ )。

## 2.3 纳米渗漏典型图像

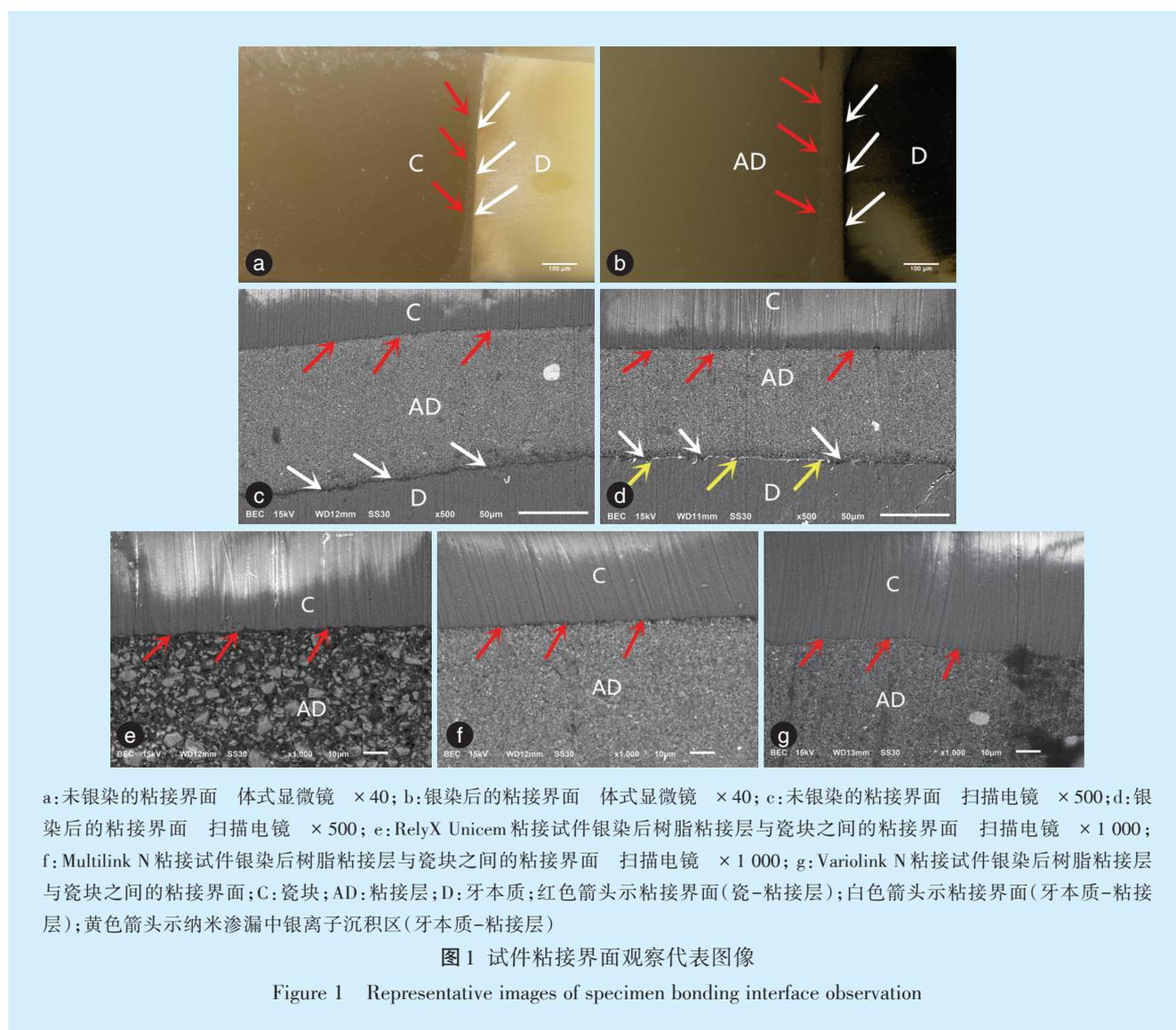
40 倍体视显微镜下观察, 发现氨化硝酸银溶液染色后粘接试件的牙本质一侧出现黑色银染现象, 瓷块一侧未出现黑色银染现象 (图 1a、图 1b); 500 倍扫描电镜下观察后发现树脂粘接层与瓷块界面未出现银离子沉积现象, 树脂粘接层与牙本质界面出现了大量的银离子沉积 (图 1c、图 1d); 1 000 倍扫描电镜观察后发现树脂粘接层与瓷块之间的界面未发现纳米渗漏现象 (图 1e ~ 1g)。图 2 为即刻测试、人工唾液、细菌侵袭下 3 种树脂水门汀与牙本质粘接界面纳米渗漏情况典型图像。

表4 不同粘接剂组间纳米渗漏分级分析表

Table 4 Classification analysis of nanoleakage among the different adhesive groups  $n(\%), n = 30$

粘接剂	老化方式	0级	1级	2级	3级	4级	Z	P	$P_{12}$	$P_{13}$	$P_{23}$
Variolink N	即刻测试	20(66.7)	5(16.7)	5(16.7)	0(0)	0(0)	75.669	< 0.001	0.001	< 0.001	< 0.001
	人工唾液	0(0)	5(16.7)	20(66.7)	5(16.7)	0(0)					
	细菌侵袭	0(0)	0(0)	0(0)	4(13.3)	26(86.7)					
Multilink N	即刻测试	0(0)	10(33.3)	15(50.0)	5(16.7)	0(0)	18.296	< 0.001	0.126	< 0.001	0.075
	人工唾液	2(6.7)	4(13.3)	11(36.7)	12(40.0)	1(3.3)					
	细菌侵袭	0	1(3.33)	8(26.7)	20(66.7)	1(3.3)					
RelyX Unicem	即刻测试	6(20.0)	15(50.0)	9(30.0)	0	0	12.597	0.002	0.041	0.002	0.988
	人工唾液	3(10.0)	11(36.7)	10(33.3)	3(10.0)	3(10.0)					
	细菌侵袭	0(0)	8(26.6)	20(66.7)	2(6.7)	0(0)					

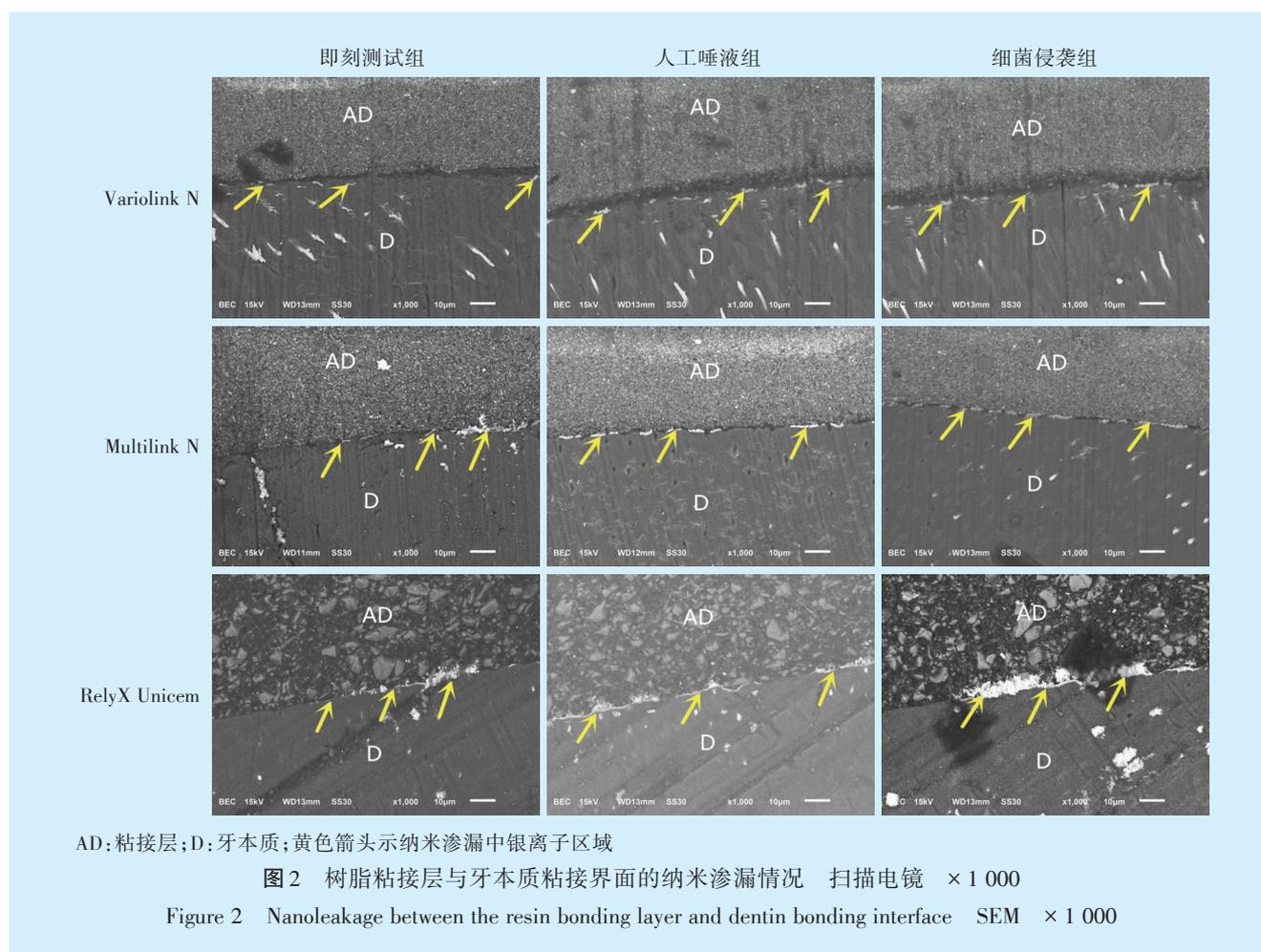
注 P为同种粘接剂时3种处理方式的总体比较; $P_{12}$ 值为同种粘接剂时,即刻测试组与人工唾液组相比; $P_{13}$ 值为同种粘接剂时,即刻测试组与细菌侵袭组相比; $P_{23}$ 值为同种粘接剂时,人工唾液组与细菌侵袭组相比



### 3 讨论

相较于氧化锆和氧化铝类全瓷修复体的颜色匹配性不佳、无法有效酸蚀会影响粘接效果,玻璃

陶瓷在临床上被广泛用于美学修复中。传统粘接水门汀对牙髓有刺激性、易溶解、美观性能不足,树脂水门汀粘接的玻璃陶瓷修复体在美学修复临



床上占据主导地位。玻璃陶瓷修复体的长期使用中,可能会出现术后敏感、继发龋、修复体脱落等,导致修复失败<sup>[3]</sup>。口腔环境中存在的微生物、唾液会影响修复体粘接界面的粘接强度和封闭性能<sup>[4]</sup>。因此探讨玻璃陶瓷修复体与牙本质的长期粘接效果一直以来是研究的热点。

老化可影响玻璃陶瓷修复体与牙本质粘接界面的粘接材料性能,是导致修复失败的重要原因<sup>[5]</sup>。人工老化是用于研究材料的粘接性能的一种高效、便捷的处理方式。目前,人工老化的方式有液体老化、冷热循环老化、应力载荷老化、光老化等。口腔环境中除唾液外,还有大量的细菌微生物均可能会影响粘接界面的性能。近年来,一些学者在液体老化的浸泡液中加入变异链球菌,以期能够更加真实的模拟口腔微环境<sup>[6]</sup>。本实验选用人工唾液浸泡和变异链球菌侵袭两种人工老化方式,处理分别用 Variolink N、Multilink N、RelyX Unicem 粘接的粘接试件,比较粘接后即刻及老化处理后的粘接强度和界面封闭的情况。

### 3.1 老化处理对粘接强度的影响

粘接强度实验显示 Variolink N 的即刻粘接强度显著高于 Multilink N 和 RelyX Unicem 的即刻粘接强度( $P<0.05$ ); Variolink N 在 3 种老化方式下的粘接强度均最高,但在人工唾液浸泡 6 个月和细菌侵袭 14 d 后 3 种粘接剂之间的粘接强度差异并不显著( $P>0.05$ )。Variolink N 即刻粘接强度优于 Multilink N, 推测原因有两点:其一, Multilink N 是以水为溶剂的自酸蚀树脂水门汀,水与粘接性树脂单体形成竞争关系,使单体成分不能充分地渗入到牙本质胶原纤维网架之中<sup>[7]</sup>;其二,自酸蚀粘接系统处理后保留的玷污层可不同程度地中和牙质处理剂 Primer 的酸性,降低其对牙本质的酸蚀,影响粘接性树脂的渗透<sup>[8]</sup>。RelyX Unicem 自粘树脂水门汀的使用只需一步而不需要酸蚀、预处理等步骤,牙本质没有被酸蚀,所以玷污层不被去除,无混合层的形成,可能是本实验中 RelyX Unicem 即刻粘接强度显示最低的原因。

Variolink N 在细菌侵袭和人工唾液浸泡后粘

接强度均出现显著下降,其原因可能是人工唾液浸泡主要借助水介质加速混合层中树脂、胶原纤维等结构的降解<sup>[9]</sup>。变异链球菌生物膜暴露会导致牙本质在混合层-牙本质界面上更大程度的脱矿,从而导致疲劳载荷下的失效<sup>[10]</sup>。Multilink N在人工唾液浸泡6个月后粘接强度值相比于粘接即刻的粘接强度值有所增高,但差异并不显著。这一结果显示出与以往研究不同的趋势。Takamizawa等<sup>[11]</sup>认为可能的原因是自酸蚀粘接剂固化后,自酸蚀粘接剂的功能单体增加了与基材的化学结合,使树脂复合材料和粘接层的力学性能有所提高。RelyX Unicem在人工唾液、细菌侵袭后粘接强度并未明显下降,Aguiar等<sup>[12]</sup>研究认为RelyX Unicem含有的甲基化磷酸酯会促进材料中的基本填料和羟基磷灰石中的钙离子发生反应形成稳定的粘接。

### 3.2 细菌侵袭对粘接界面纳米渗漏的影响

纳米渗漏的直径通常为20~200 nm,是评价粘接界面封闭的指标之一<sup>[13]</sup>。氯化硝酸银能够很好地沉积在这些没有树脂渗透,或残留的水没有被粘接剂所取代,甚至在单体转化率不完全的地方<sup>[14]</sup>。在扫描电镜的背散色电子模式下氯化硝酸银沉积的高原子序数的Ag可以反射更多的电子并显示出比背景更亮的图像,借助于场发射扫描电镜结合Image J图像处理软件分析纳米渗漏值成为临床上一种常见的分析方法。在本研究中Variolink N、Multilink N、RelyX Unicem在细菌侵袭后纳米渗漏值均相比于即刻粘接纳米渗漏值显著增加,这与徐帅等<sup>[6]</sup>研究结果一致。可能是由于变异链球菌产酸后导致局部pH值远低于牙本质的临界pH值(pH为6.5),造成树脂水门汀与牙本质之间粘接层的边缘完整性降低<sup>[15]</sup>,还有研究认为细菌产酸激活基质金属蛋白酶,在水和酶的共同作用下水解裸露胶原纤维,增加了混合层的降解<sup>[16]</sup>。

3种树脂粘接剂在细菌侵袭后,纳米渗漏分级结果显示Variolink N > Multilink N > RelyX Unicem,造成这一结果的原因可能是3种粘接材料粘接结构上的差异,全酸蚀树脂粘接剂Variolink N由于酸蚀后的粘接树脂渗透与酸蚀深度不一致可在混合层的底部形成一树脂渗漏区域。此外,Peroz等<sup>[17]</sup>检测老化处理前后树脂粘接剂与修复体之间的边缘间隙和绝对边缘差异,研究显示,全酸蚀树脂粘接材料比自酸蚀或自粘接产生的边缘间隙和绝对边缘差异值更高。Gerth等<sup>[18]</sup>运用X射线光电子能

谱分析和能谱仪分析后,发现RelyX Unicem成分含约10%的氟化物和2%的Ca(OH)<sub>2</sub>,此外RelyX Unicem 86%的钙原子与羟基磷灰石的强烈化学相互作用,这可能是形成良好的粘接封闭性能的原因之一。

### 3.3 人工唾液浸泡对粘接界面纳米渗漏的影响

Variolink N和RelyX Unicem人工唾液浸泡6个月后纳米渗漏值相比于即刻粘接的纳米渗漏值显著增加,原因可能是残留水的存在会导致树脂基体中形成不完全聚合的区域,而这些区域又会允许水渗透,加速水的吸附,并萃取未聚合或降解的单体<sup>[19]</sup>。Multilink N人工唾液浸泡6个月后纳米渗漏值增加但无统计学差异,这与国外Reis等<sup>[20]</sup>的研究结果一致,原因可能是一些温和的自酸蚀系统中的功能单体与部分脱矿界面的羟基磷灰石相互作用,形成具有不溶解的钙盐<sup>[21]</sup>。本实验研究发现人工唾液浸泡6个月后3种树脂粘接剂的纳米渗漏之间差异无统计学意义。Behr等<sup>[22]</sup>研究发现自酸蚀树脂粘接剂的界面封闭性能与自粘接树脂粘接剂的密封牙本质性能相当,这与本实验研究结果一致。

随着人们对美学和生物安全性的需求日益增长,玻璃陶瓷修复体越来越受到患者和医生的青睐。粘接界面的长期稳定与良好的封闭性能对玻璃陶瓷修复体的长期效果至关重要。老化可能是导致玻璃陶瓷修复体长期粘接失效的原因之一。选择一种能够长久、有效粘接的材料能够减少修复体继发龋、脱落等并发症发生。目前,老化实验主要依赖于体外人工老化模拟口腔环境,但是,口腔环境中除了微生物、唾液以外,咬合因素、温度变化、粘接剂的种类都会对粘接界面的长期效果产生影响,此外,体外老化处理对粘接效果的影响试验条件比较理想化,影响变量比较单一,有关材料性能的长期效果还有待于进一步的临床研究。

### 参考文献

- [1] Mobilio N, Fasiol A, Mollica F, et al. Effect of different luting agents on the retention of lithium disilicate ceramic crowns[J]. *Materials (Basel)*, 2015, 8(4): 1604-1611.
- [2] Da Silva EM, Noronha-Filho JD, Amaral CM, et al. Long-term degradation of resin-based cements in substances present in the oral environment: influence of activation mode[J]. *J Appl Oral Sci*, 2013, 21(3): 271-277.
- [3] 吴补领, 闫文娟. 椅旁CAD/CAM嵌体修复技术临床进展[J]. 口

- 腔疾病防治, 2018, 26(12): 749-758.
- [4] Zhou XX, Wang SP, Peng X, et al. Effects of water and microbial-based aging on the performance of three dental restorative materials[J]. *J Mech Behav Biomed Mater*, 2018, 80: 42-50.
- [5] Scherer MM, Prochnow C, Venturini AB, et al. Fatigue failure load of an adhesively-cemented lithium disilicate glass-ceramic: conventional ceramic etching vs etch & prime one-step primer[J]. *Dent Mater*, 2018, 34(8): 1134-1143.
- [6] 徐帅, 张凌, 李芳, 等. 三种老化方式对全酸蚀粘接系统牙本质粘接界面稳定性的影响[J]. *中华口腔医学杂志*, 2014, 49(6): 367-370.
- [7] Schuldts C, Birlbauer S, Pitchika VA, et al. Shear bond strength and microleakage of a self-etching adhesive for fissure sealing after different types of aging[J]. *Dent Mater J*, 2016, 35(3): 490-497.
- [8] Johnson GH, Lepe X, Patterson A, et al. Simplified cementation of lithium disilicate crowns: retention with various adhesive resin cement combinations[J]. *J Prosthet Dent*, 2018, 119(5): 826-832.
- [9] El-Deeb HA, Daifalla LE, Badran OI, et al. Bond strength durability of different adhesives to dentin after aging in two different solutions[J]. *J Adhes Dent*, 2016, 18(4): 303-309.
- [10] Pinna R, Usai P, Filigheddu E, et al. The role of adhesive materials and oral biofilm in the failure of adhesive resin restorations[J]. *Am J Dent*, 2017, 30(5): 285-292.
- [11] Takamizawa T, Barkmeier WW, Tsujimoto AA, et al. Influence of water storage on fatigue strength of self-etch adhesives[J]. *J Dent*, 2015, 43(12): 1416-1427.
- [12] Aguiar TR, Andre CB, Correr-Sobrinho L, et al. Effect of storage times and mechanical load cycling on dentin bond strength of conventional and self-adhesive resin luting cements[J]. *J Prosthet Dent*, 2014, 111(5): 404-410.
- [13] Arpa C, Ceballos L, Victoria Fuentes MA. Repair bond strength and nanoleakage of artificially aged CAD-CAM composite resin[J]. *J Prosthodont*, 2019, 121(3): 523-530.
- [14] 高晓利, 马淑媛, 黄怡, 等. 4种粘接剂对牙本质粘接界面的纳米渗漏研究[J]. *中华老年口腔医学杂志*, 2018, 16(3): 161-164.
- [15] Carrera CA, Li YP, Chen R, et al. Interfacial degradation of adhesive composite restorations mediated by oral biofilms and mechanical challenge in an extracted tooth model of secondary caries[J]. *J Dent*, 2017, 66: 62-70.
- [16] De Alencar NA, Da Silva Fidalgo TK, Maia LC. Influence of the number of adhesive layers on adhesive interface properties under cariogenic challenge using *streptococcus mutans*[J]. *J Adhes Dent*, 2014, 16(4): 339-346.
- [17] Peroz I, Mitsas T, Erdelt K, et al. Marginal adaptation of lithium disilicate ceramic crowns cemented with three different resin cements[J]. *Clin Oral Investig*, 2019, 23(1): 315-320.
- [18] Gerth H, Dammaschke T, Züchner H, et al. Chemical analysis and bonding reaction of RelyX Unicem and Bifix composites--a comparative study[J]. *Dent Mater*, 2006, 22(10): 934-941.
- [19] Makishi P, Andre CB, Ayres A, et al. Effect of storage time on bond strength and nano leakage expression of universal adhesives bonded to dentin and etched enamel[J]. *Oper Dent*, 2016, 41(3): 305-317.
- [20] Reis AF, Giannini M, Pereira PN. Long-term TEM analysis of the nano leakage patterns in resin-dentin interfaces produced by different bonding strategies[J]. *Dent Mater*, 2007, 23(9): 1164-1172.
- [21] Yoshida Y, Van Meerbeek B, Nakayama Y, et al. Evidence of chemical bonding at biomaterial-hard tissue interfaces[J]. *J Dent Res*, 2000, 79(2): 709-714.
- [22] Behr M, Rosentritt M, Regnet T, et al. Luting and bonding agents used in fixed prosthesis: criteria inherent to dentists[J]. *Dent Mater*, 2004, 20(2): 191-197.

(编辑 张琳, 管东华)



官网



公众号