



Universidade do Estado do Rio de Janeiro

Centro Biomédico

Faculdade de Odontologia

Tatiane Ramos dos Santos

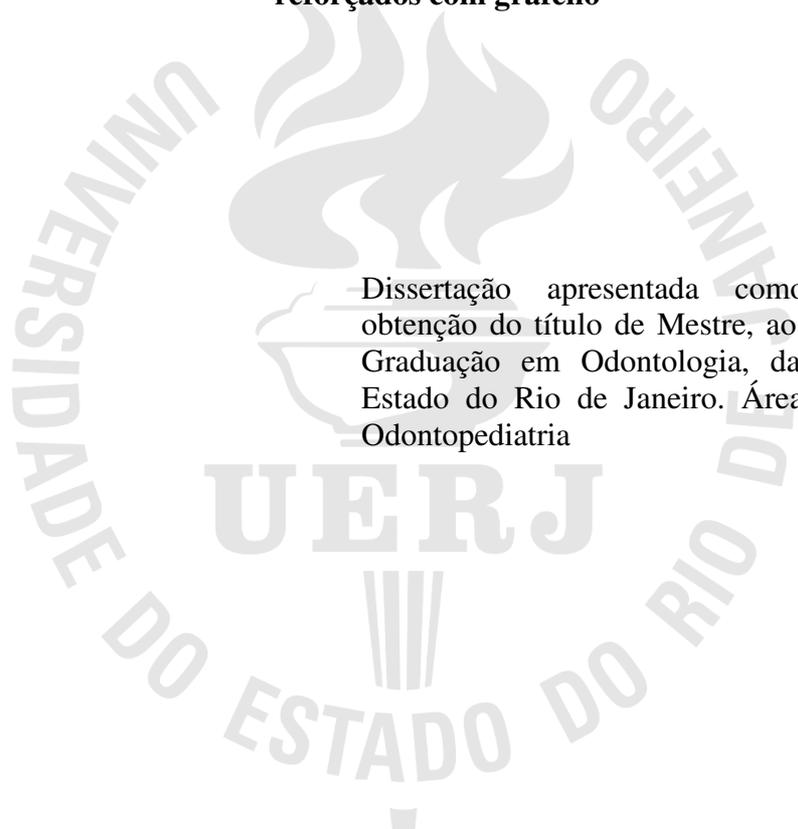
**Propriedades físico-mecânicas, químicas e biológicas de cimentos de
ionômeros de vidro reforçados com grafeno**

Rio de Janeiro

2022

Tatiane Ramos dos Santos

**Propriedades físico-mecânicas, químicas e biológicas de cimentos de ionômeros de vidro
reforçados com grafeno**



Dissertação apresentada como requisito para obtenção do título de Mestre, ao Programa de Pós-Graduação em Odontologia, da Universidade do Estado do Rio de Janeiro. Área de concentração: Odontopediatria

Orientadoras: Prof.^a Dra. Tatiana Kelly da Silva Fidalgo
Prof.^a Dra. Lucianne Cople Maia

Rio de Janeiro

2022

CATALOGAÇÃO NA FONTE
UERJ/REDE SIRIUS/CBB

R175

Ramos, Tatiane Santos.

Propriedades físico-mecânicas, químicas e biológicas de cimentos de ionômeros de vidro reforçados com grafeno / Tatiane Santos Ramos. – 2022.

46 f.

Orientadoras: Tatiana Kelly da Silva Fidalgo, Lucianne Cople Maia.

Dissertação (mestrado) – Universidade do Estado do Rio de Janeiro, Faculdade de Odontologia.

1. Cimentos de ionômeros de vidro. 2. Grafeno. 3. Materiais – Propriedades mecânicas. 4. Materiais dentários. I. Fidalgo, Tatiana Kelly da Silva. II. Maia, Lucianne Cople. III. Universidade do Estado do Rio de Janeiro. Faculdade de Odontologia. IV. Título.

CDU
616.314

Kárin Cardoso CRB/7 6287

Autorizo, apenas para fins acadêmicos e científicos, a reprodução total ou parcial desta dissertação, desde que citada a fonte.

Assinatura

Data

Tatiane Ramos dos Santos

Propriedades físico-mecânicas, químicas e biológicas de cimentos de ionômeros de vidro reforçados com grafeno

Dissertação apresentada como requisito para obtenção do título de Mestre, ao Programa de Pós-Graduação em Odontologia, da Universidade do Estado do Rio de Janeiro. Área de concentração: Odontopediatria

Aprovada em 24 de fevereiro de 2022

Orientadores:

Profa. Dra. Tatiana Kelly da Silva Fidalgo

Faculdade de Odontologia - UERJ

Profa. Dra. Lucianne Cople Maia

Universidade Federal do Rio de Janeiro

Banca Examinadora:

Profa. Dra. Adílis Kalina Alexandria de França

Faculdade de Odontologia- UERJ

Profa. Dra Aline dos Santos Letieri

Universidade Federal do Rio de Janeiro

Profa. Dra. Fernanda Signorelli Calazans

Universidade Federal Fluminense

Rio de Janeiro

2022

DEDICATÓRIA

Dedico esse trabalho aos meus pais, Sônia e Ricardo, que sempre me apoiaram e me incentivaram a estudar; ao meu irmão Ricardo, que é luz na minha vida e me concedeu a dádiva de ser a tia do Guilherme; ao meu marido Rafael, que me motiva, me dá o suporte que preciso e não me deixa desistir; e a minha dinda Daniele, que é a melhor madrinha que alguém poderia ter.

AGRADECIMENTOS

A Deus por Seu infinito amor e misericórdia, que me sustenta a cada dia e me renova todas as manhãs.

Aos meus pais, por todo amparo, motivação e esforço investido na minha formação profissional.

À professora Patrícia Tannure, que viu em mim o dom da docência antes mesmo de eu saber e foi a maior incentivadora e facilitadora que poderia ter.

A minha maravilhosa orientadora e amiga, Tatiana Fidalgo, um exemplo de professora, pesquisadora e pessoa incrível. Sorte a minha tê-la em minha vida.

Às “meninas do mestrado”: Fabíola, Dani Malhães, Dani Rezende, Thais e Thamires, obrigada por tudo suporte e motivação. Com vocês o curso foi mais encantador.

Aos professores do Programa de Pós-graduação em Odontologia da Universidade do Estado do Rio de Janeiro (UERJ), obrigada por todo ensino e por toda dedicação em tempos difíceis de pandemia. Não foi fácil, mas vocês conseguiram driblar as adversidades e formar excelentes profissionais.

À UERJ e a Faculdade de Odontologia (FO-UERJ), por todo acolhimento e aprendizado.

Ao Laboratório Multiusuário de Ensaio Mecânicos da Faculdade de Odontologia da UERJ.

À FAPERJ pela bolsa de estudos concedida e por equipar o Laboratório Multiusuário de Ensaio Mecânicos da Faculdade de Odontologia da UERJ.

A aluna de iniciação científica Laura Fernandes, obrigada por toda contribuição na realização dos ensaios.

Ao programa de Pós-graduação em Odontologia da Universidade Federal do Rio de Janeiro (UFRJ), especialmente à professora Lucianne Cople Maia, a quem agradeço por ceder o Laboratório Multidisciplinar de Pesquisa em Odontologia da Faculdade de Odontologia da UFRJ (FO/UFRJ) para realização de alguns testes e me orientar e a doutoranda Karla Leite, por toda ajuda, prontidão e ensinamentos.

Peça a Deus que abençoe os seus planos, e eles darão certo.

Provérbios 16:3 NTLH.

RESUMO

RAMOS, Tatiane Santos. *Propriedades físico-mecânicas, químicas e biológicas de cimentos de ionômeros de vidro reforçados com grafeno*. 2022. 46 f. Dissertação (Mestrado em Odontologia) - Faculdade de Odontologia, Universidade do Estado do Rio de Janeiro, Rio de Janeiro, 2022.

O objetivo desse trabalho foi avaliar propriedades físico-mecânicas, químicas e biológicas de cimentos de ionômeros de vidro autopolimerizáveis (CIV) reforçados com grafeno. Foram incorporadas diferentes proporções de pó de grafeno (0,5%, 1%, 2% e 5%) a dois cimentos de ionômero de vidro autopolimerizáveis (G_{Ketac} - Ketac, 3M e G_{Fuji} - Fuji IX, GC) e confeccionados discos de 1,5mm (altura) x 8mm (diâmetro). Os discos foram caracterizadas por meio da perfilometria 3D de não contato, obtendo-se a média de três medidas de rugosidade linear (Ra) e rugosidade volumétrica (Sa). A atividade antimicrobiana foi avaliada pelo teste de halo de inibição (n=4) em meio BHI, utilizando o inóculo de 100 μ L (1 x 10⁸ UFC/mL) de *Streptococcus mutans* (ATCC 25175). Os CIVs foram depositados em poços de 4 mm (altura) x 3mm (diâmetro), sendo o controle positivo a clorexidina a 0,2%. Avaliou-se a radiopacidade (n=6), utilizando-se o programa CorelDRAW Graphics Suite 2017[®] para estimar a intensidade de cinza (IC) nas radiografias dos discos. Para análise da liberação de flúor, os discos (n=5) foram imersos em 10mL de água deionizada por 24 horas, 7, 14, 21 e 28 dias a 37°C, com troca da solução. A leitura de flúor de 1 mL da amostra foi realizada com eletrodo íon seletivo (Orion, Brasil). Para os testes de solubilidade e sorção de água, os discos (n=4) foram pesados após a manipulação e em seguida submersos em 10 ml de água destilada, mantendo-se o conjunto a 37°C e em ~pH=7,0. Subsequentemente foram armazenados a 37°C por 24h em um dessecador e devolvidos novamente para um frasco contendo 10 mL de água destilada (37°C e ~pH=7,0). Esse procedimento foi realizado após 24h e repetido após 7, 14 e 21 dias. A microdureza Vickers (50g/10s) foi avaliada em 3 pontos 100 μ m equidistantes na superfície dos discos (n=6). Os dados foram analisados descritiva e estatisticamente (Testes de Shapiro-Wilk, Kruskal-Wallis, Mann-Whitney, ANOVA com o post hoc de Tukey – p<0,05 e Wilcoxon). Foi observado que G_{Ketac} a 0,5% e G_{Fuji} a 1% apresentaram menores valores de Ra (1,66 e 1,71) e Sa (1,84 e 1,90), respectivamente. Os grupos controles de ambos CIV apresentaram maiores Ra (4,09 e 2,84) e Sa (5,65 e 5,13). Não houve formação de halo nos diferentes grupos. A incorporação de grafeno reduziu a radiopacidade do G_{Ketac} e G_{Fuji} , com maior diferença entre os índices de cinza (IC) entre G_{Fuji} 0% (IC = 64,25) e para 5% (IC = 47,75) (p= 0,002). Houve redução na taxa solubilidade do G_{Ketac} e G_{Fuji} com incorporação de grafeno após 21 dias, sendo a relação inversamente proporcional à concentração de grafeno no G_{Fuji} . Para sorção de água, o G_{Ketac} não apresentou alterações com o tempo, nem com as concentrações de grafeno, enquanto G_{Fuji} apresentou redução da sorção tempo e concentração dependentes. Houve tendência de liberação de flúor dependente da concentração de grafeno em G_{Ketac} , enquanto no G_{Fuji} , houve maior liberação de flúor quando comparadas apenas as concentrações mais baixas e mais alta de grafeno. A incorporação de grafeno aumentou a microdureza do G_{Ketac} a 0,5% e 1% e reduziu a do G_{Fuji} em todas as concentrações. O grafeno melhorou a dureza do G_{Ketac} a 0,5 e 1%, sem alterar as demais propriedades avaliadas; e reduziu a radiopacidade, solubilidade e sorção de água do G_{Fuji} .

Palavras-chave: Ionômero de vidro. Grafeno. Propriedades mecânicas. Materiais dentários.

ABSTRACT

RAMOS, Tatiane Santos. *Physical-mechanical, chemical and biological properties of graphene-reinforced glass ionomer cements*. 2022. 46 f. Dissertação (Mestrado em Odontologia) - Faculdade de Odontologia, Universidade do Estado do Rio de Janeiro, Rio de Janeiro, 2022.

The objective was to evaluate antimicrobial activity, radiopacity, fluoride release and physical-mechanical properties of graphene-reinforced self-curing glass ionomer cements (GICs). Different proportions of graphene powder (0.5%, 1%, 2% and 5%) were incorporated into two self-curing glass ionomer cements (G_{Ketac} - Ketac, 3M and G_{Fuji} - Fuji IX, GC) and specimens of 1.5mm (height) x 8mm (diameter). The disks were characterized by non-contact 3D profilometry, obtaining the average of three measurements of linear roughness (Ra) and volumetric roughness (Sa). Antimicrobial activity was evaluated by the inhibition halo test (n=4) in BHI medium, using an inoculum of 100 μ L (1×10^8 CFU/mL) of *Streptococcus mutans* (ATCC 25175). The GICs were deposited in a 4 mm (height) x 3 mm (diameter) well, the positive control being 0.2% chlorhexidine. Radiopacity (n=6) was evaluated using the CorelDRAW Graphics Suite 2017® program to estimate the gray intensity (CI) in the radiographs of the disks. To analyze the fluoride release, the disks (n=5) were immersed in 10mL of deionized water for a period of 24 hours, 7, 14, 21 and 28 days at 37°C, with exchange of the solution. The fluoride reading of 1 mL of the sample was performed with a selective electrode (Orion, Brazil). For the solubility and water sorption tests, the samples (n=4) were weighed after handling and then submerged in 10 ml of distilled water, keeping the set at 37°C and at ~pH=7.0, were subsequently stored at 37°C for 24h in a desiccator and returned to a flask containing 10 ml of distilled water (37°C and ~pH=7.0). This procedure was performed after 24 hours and repeated after 7, 14 and 21 days. The Vickers microhardness (50g/10s) was evaluated in 3 points 100 μ m equidistant on the surface of the samples (n=6). Data were analyzed descriptively and statistically (ANOVA, followed by Tukey's test; $p < 0.05$). It was observed that G_{Ketac} at 0.5% and G_{Fuji} at 1% presented lower values of Ra (1.66 and 1.71) and Sa (1.84 and 1.90), respectively. Control groups from both CIV had higher Ra (4.09 and 2.84) and Sa (5.65 and 5.13). There was no halo formation in the different groups. The incorporation of graphene reduced the radiopacity of G_{Ketac} and G_{Fuji} , with a greater difference between the ash indices (CI) between G_{Fuji} 0% (CI = 64.25) and for 5% (CI = 47.75) ($p = 0.002$). There was a reduction in the solubility rate of G_{Ketac} and G_{Fuji} with the incorporation of graphene after 21 days, the relationship being inversely proportional to the concentration of graphene in G_{Fuji} . For water sorption, G_{Ketac} did not show changes with time, nor with graphene concentrations, while G_{Fuji} showed time and concentration dependent reduction of sorption. There was a trend of fluoride release depending on graphene concentration in G_{Ketac} , while in G_{Fuji} , there was a greater release of fluoride when comparing only the lowest and highest concentrations of graphene. The incorporation of graphene increased the microhardness of G_{Ketac} at 0.5% and 1% and reduced that of G_{Fuji} at all concentrations. Graphene improved the microhardness of G_{Ketac} to 0.5 and 1%, without changing its properties; and reduced the radiopacity, solubility and water sorption of G_{Fuji} .

Keywords: Glass ionomer. Graphene. Mechanical properties. Dental materials.

LISTA DE FIGURAS

Figura 1-	Esquema representativo do teste de halo de inibição.....	23
Figura 2-	Imagens representativas da perfilometria de amostras de G _{Ketac} e G _{Fuji}	25
Figura 3-	Radiografia digitalizada transportada para o programa CorelDRAW Graphics Suite 2017® para medir radiopacidade através de intensidade de cinza.....	27
Figura 4-	Exposição gráfica dos resultados de liberação de flúor do G _{Ketac} e G _{Fuji} (0%, 0,5%, 1%, 2% e 5%) após 24horas, 7, 14, 21 e 28 dias.....	30

LISTA DE TABELAS

Tabela 1-	Detalhamento das amostras para cada ensaio realizado.....	21
Tabela 2 -	Valores de rugosidade linear (Ra) e volumétrica (Sa).....	25
Tabela 3 –	Valores médios de cinza obtidos para cada amostra e suas respectivas concentrações de ionômero/grafeno.....	27
Tabela 4 -	Análise dos testes de solubilidade das amostras após 24 horas, 7, 14 e 21 dias.....	27
Tabela 5 -	Análise dos testes de sorção das amostras após 24 horas, 7, 14 e 21 dias.....	28
Tabela 6-	Análise da média e desvio padrão das amostras em ensaio de microdureza Vickers.....	38
Tabela7 -	Análise do teste de liberação de flúor das amostras após 24 horas, 7, 14, 21 e 28 dias.....	29

LISTA DE ABREVIATURAS E SIGLAS

BHI	Brain Heart Infusion
CIV	Cimento de ionômero de vidro
DMSO	Dimetilsulfóxido
Fj	Fuji
GO	Óxido de grafeno
Kt	Ketac Molar
MPa	Megapascais
μ	Micrômetro
mL	Mililitro
N	Newtons
<i>P</i>	Valor de p
ppmF	Partes por milhão de flúor
Ra	Rugosidade linear
Sa	Rugosidade volumétrica
UERJ	Universidade Estadual do Rio de Janeiro
UFRJ	Universidade Federal do Rio de Janeiro
VHN	Microdureza Vickers
°C	Graus celsius
%	Porcentagem
~	Aproximadamente

SUMÁRIO

	INTRODUÇÃO.....	12
1	DESENVOLVIMENTO DA PESQUISA.....	15
1.1	Proposição.....	15
1.1.1	<u>Objetivo geral.....</u>	15
1.1.2	<u>Objetivo específico.....</u>	15
1.2	Metodologia.....	15
1.2.1	<u>Aspectos éticos.....</u>	15
1.2.2	<u>Delineamento da pesquisa.....</u>	16
1.3	Resultados	17
2	CONSIDERAÇÕES FINAIS.....	37
	CONCLUSÃO.....	38
	REFERÊNCIAS.....	39
	APENDICE - Autorização de inclusão de artigo na Biblioteca Digital de Teses e Dissertação da Universidade do Estado do Rio de Janeiro.....	43
	ANEXO - Produção acadêmica.....	44

INTRODUÇÃO

A abordagem odontológica minimamente invasiva é um conceito que rege e permeia a odontologia atual. No passado, o tratamento de uma lesão de cárie era mais invasivo e seguia os conceitos de Black: extensão para prevenção (MURDOCH-KINCH; MCLEAN, 2003). Tal conceito deu lugar ao novo paradigma: a odontologia minimamente invasiva. Descritos no final do século XX (TYAS; ANUSAVICE; FRENCKEN; MOUNT, 2000) e com bases sólidas até os dias atuais, os princípios da mínima intervenção se baseiam em preservação da estrutura dental sadia, remineralização de tecidos dentários, redução da população microbiana, redução do risco da desmineralização, reparo de restaurações defeituosas e remoção seletiva do tecido cariado (Innes and Manton 2017).

A remoção seletiva é preconizada, pois promove preservação de estrutura dental sadia, removendo apenas o tecido que não é passível de remineralização. Tal feito foi possível graças ao avanço dos materiais odontológicos (MARTINS; SILVA; FERREIRA; REIS *et al.*, 2018; MURDOCH-KINCH; MCLEAN, 2003). No entanto, apesar dos materiais dentários atuais apresentarem constante melhora em suas propriedades, ainda carecem de melhorias no que tange as propriedades físicas, químicas, mecânicas e biológicas (FONSECA; GERHARDT; PEREIRA; SINHORETI *et al.*, 2013; SHAFIEI; DOOZANDEH; GHAFFARIPOUR, 2018).

A utilização clínica eficiente de materiais odontológicos não é apenas dependente da sua biocompatibilidade, mas também de sua resistência e durabilidade suficientes que garantam melhores performances laboratoriais e clínicas (MOHARAMZADEH; BROOK; VAN NOORT; SCUTT *et al.*, 2008; MONNERAT; PONTES; DE MELO, 2002). A liberação de flúor (CURY; DE OLIVEIRA; DOS SANTOS; TENUTA, 2016) e o efeito biológico desses materiais na preservação dos dentes também é importante, visto que o tratamento restaurador deve manter a saúde dos tecidos orais (AMMARI; MOLITERNO; HIRATA JUNIOR; SELLOS *et al.*, 2014; BOECKH; SCHUMACHER; PODBIELSKI; HALLER, 2002; DAVIDOVICH; WEISS; FUKS; BEYTH, 2007).

Os materiais restauradores devem apresentar resistência suficiente para desempenharem sua função na cavidade bucal (SILVA; CARVALHO; GUBERMAN; PRADO *et al.*, 2017). Nesse contexto, dentre os principais desafios que os materiais odontológicos são submetidos na cavidade bucal, citam-se a constante exposição à umidade, a troca iônica e a colonização pela microbiota deste microambiente (DE ALENCAR;

FIDALGO; CAJAZEIRA; MAIA, 2014). Estas condições podem levar a problemas de falhas mecânicas, influenciando no sucesso clínico inicial e exigindo reparos futuros para restauração, acarretando custos extras para o paciente (MARTINS; SILVA; FERREIRA; REIS *et al.*, 2018). Dessa forma, sugere-se que previamente aos estudos clínicos, esses materiais devam ser submetidos aos testes físicos e mecânicos, de forma que simulem a fisiologia do ambiente bucal (MIANA; FIDALGO; PORTELA; MAIA, 2014; PAIVA; FIDALGO; MAIA, 2014).

Dentre os materiais utilizados na odontologia minimamente invasiva, os cimentos de ionômero de vidro (CIV) são amplamente estudados desde 1970 e atualmente são reconhecidos como importantes restauradores, especialmente na área da odontopediatria (CHEN; ZHAO; PENG; YANG *et al.*, 2020). Possuem desempenho clínico favorável que inclui a biocompatibilidade e baixa citotoxicidade, adesão verdadeira aos tecidos dentais, coeficiente favorável de expansão térmica linear e liberação de flúor (HUME; MOUNT ; 1988; SUN; YAN; DUAN; ZHANG *et al.*, 2018; WIEGAND; BUCHALLA; ATTIN, 2007). Sua aplicação inclui restauração de dentes decíduos e permanentes, cimentação de coroas, pontes e aparelhos ortodônticos, realização de selamentos e uso em para terapia restauradora atraumática (SIDHU; NICHOLSON, 2016; SUN; YAN; DUAN; ZHANG *et al.*, 2018). No entanto, por apresentarem resistência mecânica inferior quando comparado aos compósitos resinosos, alta fragilidade e propriedades físico-mecânicas pobres, diferentes estratégias tem sido empregadas a fim de reduzir essas limitações (AL-ANGARI; HARA; CHU; PLATT *et al.*, 2014; PAIVA; FIDALGO; DA COSTA; MAIA *et al.*, 2018; SILVA; PEREIRA; MOTA; WATANABE *et al.*, 2016; TIWARI; KENCHAPPA; BHAYYA; GUPTA *et al.*, 2016; WANG; DARVELL, 2009).

Com o propósito de superar suas desvantagens, ao longo dos anos, pesquisadores têm se concentrado na melhoria das propriedades dos CIV. Simmons, em 1983, adicionou pó de liga de amálgama de prata e estanho ao cimento, o que foi chamada de mistura milagrosa, com objetivo de ter um material com maior durabilidade e resistência mecânica (SIMMONS, 1983), porém não obteve sucesso. Outras tentativas como a adição de zinco, titânio, bário, estrôncio (CHING; LUDDIN; KANNAN; AB RAHMAN *et al.*, 2018), resina (MITRA, 1991), hidroxiapatita (LUCAS; ARITA; NISHINO, 2003), fibras (GAROUSHI; VALLITTU; LASSILA, 2017; SILVA; PEREIRA; MOTA; WATANABE *et al.*, 2016), zircônia (GU; YAP; CHEANG; KOH *et al.*, 2005) e partículas nanométricas (NAJEEB; KHURSHID; ZAFAR; KHAN *et al.*, 2016), não mostraram diferenças significativas na melhora das propriedades mecânicas, quando comparados ao CIV original. A necessidade de um material

que tenha resistência ao desgaste, biocompatibilidade e que libere flúor ainda é uma demanda de material dentário no mercado.

Diante desse cenário, o grafeno, uma das formas cristalinas do carbono, tem sido apontado como um potencial material para utilização biomédica (NOVOSELOV; FAL'KO; COLOMBO; GELLERT *et al.*, 2012). Pode ser obtido a partir de grafite naturalmente disponível e se apresenta em formato de nanofolhas (SYAMA; MOHANAN, 2016). Sua estrutura química consiste em uma ligação híbrida dos átomos de carbono (sp^2), no formato de anéis hexagonais (favos de mel), onde cada carbono se une a outros três na estrutura, o que confere ao material propriedades únicas e versáteis (CHEN; ZHAO; PENG; YANG *et al.*, 2020). É considerado um dos materiais isolados mais resistentes, apresentando estabilidade química e térmica, excelentes propriedades mecânicas (resistência à ruptura de 42 N / m e módulo de Young de 1,0 Tpa) (LEE; WEI; KYSAR; HONE, 2008), alta condutividade elétrica, alta resistência ao desgaste e atrito, flexibilidade, biocompatibilidade e propriedades antibacterianas (AL-JUMAILI; ALANCHERRY; BAZAKA; JACOB, 2017; SYAMA; MOHANAN, 2016; TU; LV; XIU; HUYNH *et al.*, 2013).

Estudos vem demonstrando a versatilidade do grafeno na odontologia. A adição de grafeno parece melhorar a dureza e a mineralização de cimentos bioativos de silicato de cálcio e hidroxiapatita, além de ser biologicamente compatível (DUBEY; RAJAN; BELLO; MIN *et al.*, 2017; SOLIS MORE; PANELLA; FIORAVANTI; PERROZZI *et al.*, 2018; ZHAO; DAI; LI; LI *et al.*, 2018). He et al., (2015) avaliaram a ação do óxido de grafeno, um derivado do grafeno como um nanomaterial antimicrobiano e concluíram que as nanofolhas de grafeno foram altamente eficazes na inibição do crescimento microrganismos bucais (*Streptococcus mutans*, *Fusobacterium nucleatum* e *Porphyromonas gingivalis*) e que seria um material com aplicação promissora para terapia e tratamento odontológico (HE; ZHU; QI; WANG *et al.*, 2015). Outro trabalho mostrou que o grafeno e os seus derivados foram considerados não tóxicos para os osteoblastos humanos, adequado para a proliferação destes e ainda poderia induzir a expressão de genes relacionados a osteoblastos e diferenciação em células-tronco da polpa dentária (SUN; YAN; DUAN; ZHANG *et al.*, 2018). Para esta pesquisa, propõe-se a adição de diferentes concentrações de grafeno a Ketac Molar Easy Mix® (3M ESPE, Monrovia, EUA) e Fuji IX® (GC Corporation, Tokyo, Japão), dois tipos de CIV autopolimerizáveis que são considerados bons materiais disponíveis no mercado atualmente, mas podem ser aperfeiçoados. Essa proposta parece ser mais barata, ter maior facilidade de acesso e ser mais promissora quando comparada a confecção de um material restaurador feito exclusivamente de grafeno, o que seria extremamente caro e de difícil comercialização.

1 DESENVOLVIMENTO DA PESQUISA

1.1 Proposição

1.1.1 Objetivo geral

Avaliar as propriedades físicas, químicas e biológicas da incorporação de diferentes concentrações de grafeno (0,5%; 1%; 2%; 5%) em dois cimentos de ionômero de vidro autopolimerizáveis.

1.1.2 Objetivos específicos

Avaliar os seguintes itens em CIV reforçados pelo grafeno nas diferentes proporções (0,5%; 1%; 2%; 5%) comparando-se ao controle (0%):

- a. Avaliação superficial da amostra;
- b. Potencial antimicrobiano;
- c. Radiopacidade;
- d. Sorção de água e solubilidade
- e. Microdureza;
- f. Liberação de flúor

1.2 Metodologia

1.2.1 Aspectos Éticos

Este ensaio dispensa o uso do comitê de ética em pesquisa (CEP) por se tratar de um ensaio laboratorial que não utilizou amostras biológicas.

1.2.2 Delineamento da pesquisa

O presente estudo é composto por uma pesquisa experimental *in vitro*, realizada no Laboratório Multiusuário de Ensaios Mecânicos da Faculdade de Odontologia da Universidade do Estado do Rio de Janeiro (FO/UERJ) e no Laboratório Multidisciplinar de Pesquisa em Odontologia da Faculdade de Odontologia da Universidade Federal do Rio de Janeiro (FO/UFRJ). Dois cimentos de ionômero de vidro autopolimerizáveis Ketac Molar Easy Mix® (3M ESPE, Monrovia, EUA) e Fuji IX® (GC Corporation, Tokyo, Japão) foram modificados com grafeno na forma de pó (Sigma Aldrich, EUA) em diferentes proporções (0,5%, 1%, 2% e 5%). Os CIV foram manipulados por um mesmo operador, de acordo com as especificações de cada fabricante, inseridos em matrizes de silicóna de condensação (CLONAGE, DFL, Rio de Janeiro, Brasil) no tamanho de 8mm x 1,5 mm e foram armazenados em meio úmido, a 37° C em estufa após presa.

As amostras foram caracterizadas por meio da perfilometria 3D de não contato através de um perfilômetro (Nanovea PS50 Optical, NANOVEA®, Irvine, USA) por um único avaliador cego, em uma área de 1mm². Três medições foram realizadas e foi calculada uma média entre elas. Para tal, utilizou-se o valor de rugosidade linear e rugosidade volumétrica com o objetivo de avaliar e caracterizar a superfície dos espécimes.

Ensaio laboratoriais foram realizados com o objetivo de entender o comportamento do material em questão, por meio das suas propriedades físicas, mecânicas, químicas e biológicas e eleger sua aplicabilidade na cavidade oral como um material restaurador.

Foi avaliado o potencial antimicrobiano através do teste de halo de inibição com a finalidade de analisar se a amostra possuía a capacidade de inibir cepas de *Streptococcus mutans*. Utilizou-se 100µL (1 x 10⁸ UFC/mL) de cepas ativadas de *Streptococcus mutans* (ATCC 25175), semeadas em 10 mL de meio BHI (Brain Heart Infusion) em 22 placas de Petri que foram previamente perfuradas com matrizes de poliéster estéril nas dimensões de 2mm de altura x 2mm de diâmetro. Os CIV foram manipulados e inseridos nesses poços antes de sua presa final e as placas foram esterilizadas em luz UV. Em seguida, foram acondicionadas em estufa a 37°C por 48h. A leitura dos halos foi realizada por um paquímetro

digital (SC-6; Mitutoyo, Japão) e o controle positivo foi feito através do gel de clorexidina a 0,2% (Perioxidin Gel®).

A radiopacidade foi medida através de uma escala de cinza, onde as amostras foram dispostas sobre uma película oclusal e radiografadas na exposição de 0,65kV. A imagem foi digitalizada e transportada para o programa CorelDRAW Graphics Suite 2017®. Tal feito definiu o quanto a incorporação do grafeno permitia que o CIV modificado fosse visualizado em tomadas radiográfica, o que poderia facilitar ou dificultar o diagnóstico frente uma alteração odontológica.

Tratando-se dos testes de sorção de água e de solubilidade, estes foram realizados com o objetivo de definir o quanto o material reforçado absorveria água, alterando seu volume e o quanto seria solúvel, ações que afetariam sua qualidade e resistência. As amostras foram manipuladas e após 48 horas, pesadas. Subsequentemente, foram acondicionadas em 10ml de água destilada (37° C, ~pH=7,0). Após 24 horas, foram novamente pesadas e em seguida armazenados em dessecador (37°C). O processo foi repetido no intervalo de 7, 14 e 21 dias e os valores de solubilidade e sorção de água foram calculados.

Para obter dados sobre a resistência dos materiais modificados e definir se os mesmos seriam mais duros devido a adição do grafeno, utilizou-se o teste de microdureza Vickers (VHN) que foi executado em 50 gramas por 10 segundos. Foram realizadas três identificações equidistantes (100µm) na superfície das amostras e uma média entre elas foi tomada.

Com o propósito de avaliar a liberação de flúor das amostras, foi realizada a análise de liberação de flúor através de um eletrodo seletivo (Orion, Brasil) que avaliou as soluções que armazenaram os espécimes por 24h, 7 14, 21 e 28 dias.

1.3 Resultados

Physical-mechanical, chemical and biological properties of graphene-reinforced glass ionomer cements

Tatiane Ramos dos Santos¹, Laura Soares Viana Fernandes¹, Karla Lorene de França Leite², Adilis Alexandria de França¹, Emmanuel Nogueira Leal da Silva,³ Lucianne Cople Maia², Tatiana Kelly da Silva Fidalgo¹.

¹Department of Preventive and Community Dentistry, Dental School, Universidade do Estado do Rio de Janeiro, RJ, Brazil.

²Department of Pediatric Dentistry and Orthodontics, Dental School, Universidade Federal do Rio de Janeiro, RJ, Brazil.

³Department of Clinics, Dental School, Universidade do Estado do Rio de Janeiro, RJ, Brazil.

Corresponding author

Tatiana Kelly da Silva Fidalgo - ORCID: 0000-0003-1340-9967

E-mail: tatianaksfidalgo@gmail.com

Adress: Av. 28 de Setembro, 157 – Vila Isabel - CEP: 20551-030, Rio de Janeiro – RJ, Brazil.

ABSTRACT

The objective of this work was to evaluate physical-mechanical, chemical, and biological properties of graphene-reinforced glass ionomer cements. Different proportions of graphene powder (0.5%, 1%, 2%, and 5%) were incorporated into two self-curing glass ionomer cements (GIC) (G_{Ketac} - Ketac, 3M, and G_{Fuji} - Fuji IX, GC) and 1.5mm (height) x 8mm (diameter) discs were made. The surfaces (central area of 1mm²) were characterized by non-contact 3D profilometry, obtaining the average of three measurements of linear roughness (Ra) and volumetric roughness (Sa). Antimicrobial activity was evaluated by the inhibition zone test (n=4) in a Petri dish containing BHI medium, using an inoculum of 100µL (1×10^8 CFU/mL) of *Streptococcus mutans* (ATCC 25175) deposited in a 4 mm (height) x 3 mm (diameter) well, with a positive control of 0.2% chlorhexidine. Radiopacity (n=6) was evaluated using the CorelDRAW Graphics Suite 2017® program to estimate the gray intensity (GI) in the radiographs of the discs. To analyze the fluoride release, the samples (n=5) were kept in relative humidity for 24h at 37°C in an oven, immersed in 10mL of deionized water for a period of 24 hours, and 7, 14, 21, and 28 days elapsed from its manufacture, with exchange of the solution after fluoride reading with a selective electrode (Orion, Brazil). For the solubility and water sorption tests, the samples (n=4) were weighed after handling and then submerged in 10 ml of distilled water, keeping the set at 37°C and at ~pH=7.0; were subsequently stored at 37°C for 24h in a desiccator; and were then returned to a flask containing 10 ml of distilled water (37°C and ~pH=7.0). This procedure was performed after 24 hours and repeated after 7, 14, and 21 days. The Vickers microhardness

(50g/10s) was evaluated in 3 points that were 100µm equidistant on the surface of the discs (n=6). Data were analyzed descriptively and statistically (Shapiro-Wilk, Kruskal-Wallis, Mann-Whitney tests, ANOVA with Tukey's post hoc – $p < 0.05$ and Wilcoxon). It was observed that G_{Ketac} at 0.5% and G_{Fuji} at 1% presented lower values of Ra (1.66 and 1.71) and Sa (1.84 and 1.90), respectively. Control groups from both GICs had higher Ra (4.09 and 2.84) and Sa (5.65 and 5.13). No inhibition zone formation was observed in the different groups. The incorporation of graphene reduced the radiopacity of G_{Ketac} and G_{Fuji} , with a greater difference between the ash indices (GI) between G_{Fuji} 0% (GI = 64.25) and 5% (GI = 47.75) ($p = 0.002$). A reduction was observed in the solubility rate of G_{Ketac} and G_{Fuji} with the incorporation of graphene after 21 days, the relationship being inversely proportional to the concentration of graphene in G_{Fuji} . For water sorption, neither G_{Ketac} nor graphene concentrations showed any changes over time, while G_{Fuji} showed time and concentration dependent reductions of sorption. A trend of fluoride release was found, depending on the graphene concentration in G_{Ketac} , while in G_{Fuji} , there was a greater fluoride release when comparing only the lowest and highest concentrations of graphene. The incorporation of graphene increased the microhardness of G_{Ketac} at 0.5% and 1%, and reduced that of G_{Fuji} in all concentrations. Graphene improved the hardness of G_{Ketac} to 0.5% and 1%, without changing its properties, and reduced the radiopacity, solubility, and water sorption of G_{Fuji} .

Keywords: Glass ionomer; Graphene; Mechanical properties; Dental materials.

INTRODUÇÃO

Dentre os materiais utilizados na odontologia minimamente invasiva, os cimentos de ionômero de vidro (CIV) são amplamente estudados desde 1970 e atualmente são reconhecidos como importantes restauradores, especialmente na área da odontopediatria (Chen, Zhao et al. 2020). Possui desempenho clínico favorável que inclui a biocompatibilidade e baixa citotoxicidade, adesão verdadeira aos tecidos dentais, coeficiente favorável de expansão térmica linear, liberação de flúor (Hume and Mount, Hume and Mount 1988, Wiegand, Buchalla et al. 2007, Sun, Yan et al. 2018) e variada aplicabilidade (Sidhu and Nicholson 2016, Sun, Yan et al. 2018). No entanto, por apresentarem propriedades físico-mecânicas inferiores aos compósitos resinosos, diferentes estratégias têm sido empregadas ao longo dos anos a fim de reduzir essas e outras limitações (Wang and Darvell 2009, Al-Angari,

Hara et al. 2014, Silva, Pereira et al. 2016, Tiwari, Kenchappa et al. 2016, Paiva, Fidalgo et al. 2018). A adição do pó de liga de amálgama de prata e estanho (Simmons 1983), incorporação de nanopartículas de prata (Paiva, Fidalgo et al. 2014), adição de zinco, titânio, bário, estrôncio (Ching, Luddin et al. 2018), de resina (Mitra 1991), de hidroxiapatita (Lucas, Arita et al. 2003), de fibras (Silva, Pereira et al. 2016, Garoushi, Vallittu et al. 2017), de zircônia (Gu, Yap et al. 2005) e de demais partículas nanométricas (Najeeb, Khurshid et al. 2016) ao pó do CIV não mostrou diferenças significativas que melhorassem suas propriedades.

Diante desse cenário, o grafeno, uma das formas cristalinas do carbono, tem sido apontado como um potencial material para utilização odontológica (Novoselov, Fal'ko et al. 2012). Pode ser obtido a partir de grafite naturalmente disponível e se apresenta em formato de nanofolhas (Syama and Mohanan 2016). Sua estrutura química consiste em uma ligação híbrida dos átomos de carbono (sp^2), no formato de anéis hexagonais (favos de mel), onde cada carbono se une a outros três na estrutura, o que confere ao material propriedades únicas e versáteis (Chen, Zhao et al. 2020). É considerado um dos materiais isolados mais resistentes até agora (Syama and Mohanan 2016). Apresenta estabilidade química e térmica, excelentes propriedades mecânicas (resistência à ruptura de 42 N / m e módulo de Young de 1,0 Tpa) (Lee, Wei et al. 2008), , alta resistência ao desgaste e atrito, flexibilidade, biocompatibilidade e propriedades antibacterianas (Tu, Lv et al. 2013, Syama and Mohanan 2016, Al-Jumaili, Alancherry et al. 2017). Por apresentar características compatíveis com os materiais odontológicos, o grafeno se destaca por possuir potencial de amplo espectro de aplicação na odontologia. Particularmente ao ser incorporado a materiais restauradores como o cimento de ionômero de vidro, este material, em tese, possibilitaria reduzir as microfissuras na estrutura interna, protegendo assim a desintegração causada por microrganismos bucais (Sarosis, Biris et al. 2016).

Considerando-se todos os aspectos mencionados, o objetivo deste artigo é avaliar as propriedades físico-químicas e biológicas decorrentes da incorporação de grafeno (0,5%; 1%; 2%; 5%) em de cimentos de ionômero de vidro autopolimerizáveis.

METODOLOGIA

Modificação dos CIV

Incorporação do grafeno

Foram avaliadas duas marcas comerciais de cimentos de ionômero de vidro autopolimerizáveis, o Ketac Molar Easy Mix (3M ESPE, Monrovia, EUA) - G_{Ketac} e o Fuji IX (GC Corporation, Tokyo, Japão) - G_{Fuji} .

O grafeno na forma de pó (Sigma Aldrich, EUA) foi incorporado ao pó dos CIV nas seguintes concentrações (% - de proporção grafeno/CIV (pó)): 0.5; 1; 2; 5. Para a confecção dos corpos de prova, cada cimento foi dividido em cinco grupos: (i) sem adição de grafeno, (ii) adição de 0.5% de grafeno, (iii) adição de 1% de grafeno, (iv) adição de 2% de grafeno, (v) adição de 5% de grafeno.

Confecção dos corpos de prova

Para a confecção dos corpos de prova foram utilizadas matrizes de silicóna de condensação (CLONAGE, DFL, Rio de Janeiro, Brazil) no tamanho de 1,5mm (altura) x 8mm (diâmetro). Os cimentos do grupo controle (Grafeno *free*) e experimentais (0,5%; 1%; 2%; 5% de adição de grafeno) foram manipulados de acordo com as especificações de cada fabricante. Após manipulação, G_{Ketac} e G_{Fuji} foram inseridos na matriz com auxílio de uma espátula metálica e, em seguida, foi realizada uma pressão com uma lâmina de vidro para microscopia coberto com vaselina pastosa. Aguardaram-se 5 minutos para a presa dos materiais. Os espécimes medindo 1,5mm (altura) x 8 mm (diâmetro) foram armazenadas em meio úmido a 37° C, em estufa. O detalhamento de cada tipo de corpo de prova está localizado na Tabela 1.

Tabela 1: Detalhamento das amostras para cada ensaio realizado.

<i>Tipo de Ensaio</i>	<i>Quantidade de espécimes</i>	<i>Tamanho dos espécimes Altura x Diâmetro (mm)</i>	<i>Espécimes por grupo</i>
Avaliação superficial da amostra	30	1,5x8mm	3
Atividade Antimicrobiana	40	4x3mm	4
Análise de Radiopacidade	50	1,5x8mm	5
Análise de Solubilidade e Sorção de água	40	1,5x8mm	4
Microdureza Vickers	60	1,5x8mm	6
Análise de Liberação de Flúor	50	1,5x8mm	5

Avaliação superficial da amostra por perfilometria de não contato

Para realização deste teste, foram confeccionados três corpos de prova para cada grupo e cada concentração de CIV/grafeno, totalizando 30 amostras que foram caracterizadas por meio da perfilometria 3D de não contato (Nanovea PS50 Optical, NANOVEA®, Irvine, Estados Unidos da América). Para tanto, padronizou-se uma área de avaliação de 1mm^2 na superfície dos espécimes. Três medições foram realizadas com sensor confocal cromático usando uma fonte axial de luz branca, velocidade de varredura de 2 mm / s e um índice de refração de 10.000. Foram obtidas as médias das três medidas de rugosidade linear (R_a) ($500\text{ }\mu\text{m}$) e das três medidas de rugosidade volumétrica (S_a) ($250\text{ }\mu\text{m}^2$) para cada espécime (Alencar et al. 2020). Estas análises foram realizadas por um único avaliador cego.

Atividade antimicrobiana – Teste de halo de inibição

Para o teste em questão, realizou-se ativação de cepas de *Streptococcus mutans* (ATCC 25175). As colônias foram incubadas em meio de crescimento estéril ágar Brain Heart Infusion (BHI) em uma placa de 20 mL a 37°C por 48 horas. Três colônias isoladas foram transferidas para 20 mL de cultura BHI líquida estéril e foram incubadas a 37°C por 24 horas a fim de atingir o crescimento máximo. Usou-se a escala 0,5 de McFarland que avaliou uma alíquota de 3 mL obtendo-se as concentrações para os inóculos ($100\mu\text{L} - 1 \times 10^8\text{ UFC/mL}$).

Vinte e duas placas de Petri contendo 10 mL de ágar BHI receberam duas perfurações em pontos equidistantes para confecção dos poços. As perfurações foram realizadas com matriz de poliéster estéril nas dimensões de 4mm (altura) x 3mm (diâmetro). Os CIV G_{Ketac} e G_{Fuji} dos grupos controles e dos grupos experimentais foram manipulados de acordo com as especificações de cada fabricante e foram inseridos antes de sua polimerização nos poços. Para cada placa, dois espécimes do mesmo grupo foram fixados, totalizando 4 espécimes por grupo com o tamanho de 4 mm (altura) x 3mm (diâmetro). Para o controle positivo, utilizou-se o gel de clorexidina a 0,2% (Perioxidin Gel®) que foi inserido nos poços de duas placas. Após a geleificação dos CIV's, as placas foram esterilizadas em luz UV por 30 minutos.

O inóculo de $100\mu\text{L}$ ($1 \times 10^8\text{ UFC/mL}$) de *Streptococcus mutans* (ATCC 25175) foi espalhado uniformemente sobre a superfície do meio de cultura das 22 placas que em seguida foram incubadas a 37°C por 48 horas. Após, os diâmetros dos halos de inibição ao redor dos espécimes foram medidos com um paquímetro digital (SC-6; Mitutoyo, Japão). Três medidas foram feitas para cada diâmetro, subtraindo-se o disco, calculando-se a média e desvio-padrão para cada CIV.

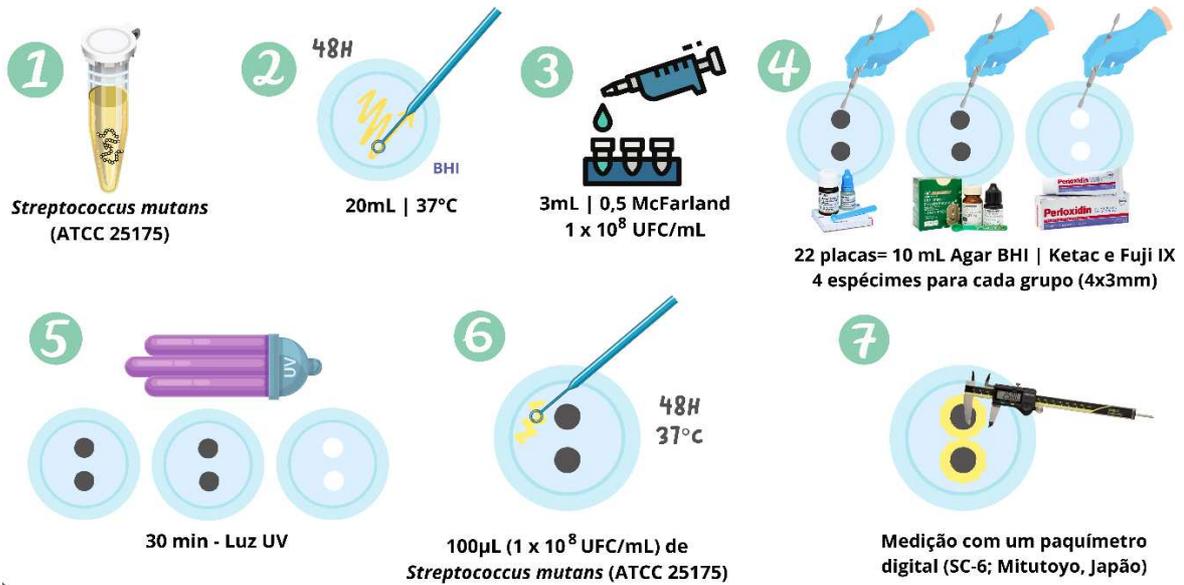


Figura 1: Esquema representativo do teste de halo de inibição.

Análise da radiopacidade

Para realização deste teste, foram confeccionados 5 discos para cada grupo e cada concentração de CIV/grafeno, totalizando 50 amostras medindo 1,5 (altura) x 8mm (diâmetro). Após a polimerização final, os espécimes foram dispersos sobre uma película oclusal (Filme Oclusal IO-41, Kodak) e foi realizada uma radiografia com tempo de exposição de 0,65 kV. A imagem radiográfica foi digitalizada e importadas para o programa CorelDRAW Graphics Suite 2017[®]. Utilizou-se uma escala de intensidade de cinza (IC) através dos valores de cinza gerados pelo programa para avaliar a radiopacidade de cada amostra. Os valores de cinza foram obtidos por um único avaliador, foram somados e obteve-se uma média para cada grupo de CIV com suas respectivas concentrações de grafeno.

Análise de sorção e solubilidade

O ensaio de sorção e solubilidade foi realizado de acordo com Uysal et al (2008). Foram confeccionados discos medindo 1,5 (altura) x 8 mm (diâmetro) para cada grupo e cada concentração de CIV/grafeno, totalizando 40 amostras. Cada disco foi pesado após 48h de manipulação. Em seguida, foram submersos em 10 ml de água destilada mantida a 37° C com ph=7,0. Após 24 horas, foram novamente pesados e subsequentemente armazenados a 37°C em dessecador. O processo foi repetido no intervalo de 7, 14 e 21 dias. Após esse período, o

valor da sorção de água (W_{sp}) em $\mu\text{g}/\text{mm}$ e o valor da solubilidade de cada tipo de CIV com suas modificações foram calculados (Uysal, Basciftci et al. 2008).

Microdureza Vickers

Para realização deste teste, foram confeccionados 6 discos medindo 1,5 (altura) x 8mm (diâmetro) para cada grupo e cada concentração de CIV/grafeno, totalizando 60 amostras. Um penetrador Vickers foi usado para medir a microdureza Vickers (VHN) que foi realizada na superfície de cada amostra com uma carga de 50 g durante 10 s. Foram obtidas médias de três identificações equidistantes (100 μm) realizadas na superfície de cada espécime por um único operador.

Análise de liberação de flúor

Para realização deste teste, foram confeccionados 5 discos medindo 1,5 mm (altura) x 8 mm (diâmetro) para cada grupo e cada concentração de CIV/grafeno, totalizando 50 amostras, que foram mantidos em umidade relativa por 24h a 37°C em estufa após presa total. Em seguida, foram imersos em 10 mL de água deionizada pelo período de 24 horas, 7, 14, 21 e 28 dias decorridos da sua confecção, com troca da solução entre os períodos. A leitura de flúor de 1 mL da amostra foi realizada com eletrodo seletivo (Orion, Brasil). Previamente às leituras, eram realizadas calibrações com soluções de fluoreto de sódio de 0,125 a 0,500 ppmF preparadas com TISAB II na proporção de 1:1.

Análise dos dados

Os dados foram tabulados e analisados no programa estatístico SPSS 20.0 (SPSS Inc, Chicago, USA) e submetidos à análise de normalidade de distribuição pelo teste Shapiro-Wilk para a determinação dos testes estatísticos. Foi aplicado o teste de Kruskal-Wallis e o Mann-Whitney para os dados de perfilometria (R_a e S_a) e para análise de liberação de flúor entre os grupos, considerando o mesmo intervalo de tempo. Para os dados de radiopacidade e microdureza Vickers, foi aplicado o ANOVA com o post hoc de Tukey. O teste de Wilcoxon foi utilizado para comparar a liberação de flúor ao longo do tempo. Foi adotado um intervalo de confiança de 95%.

RESULTADOS

Análise da Topografia de Superfície

Os valores de Ra e As estão representados na Tabela 2, assim como a média e o desvio padrão. A análise estatística mostra que não houve diferença estatística entre os grupos ou dentro dos grupos ($p > 0,05$). A Figura 2 ilustra as amostras de G_{Ketac} e G_{Fuji} .

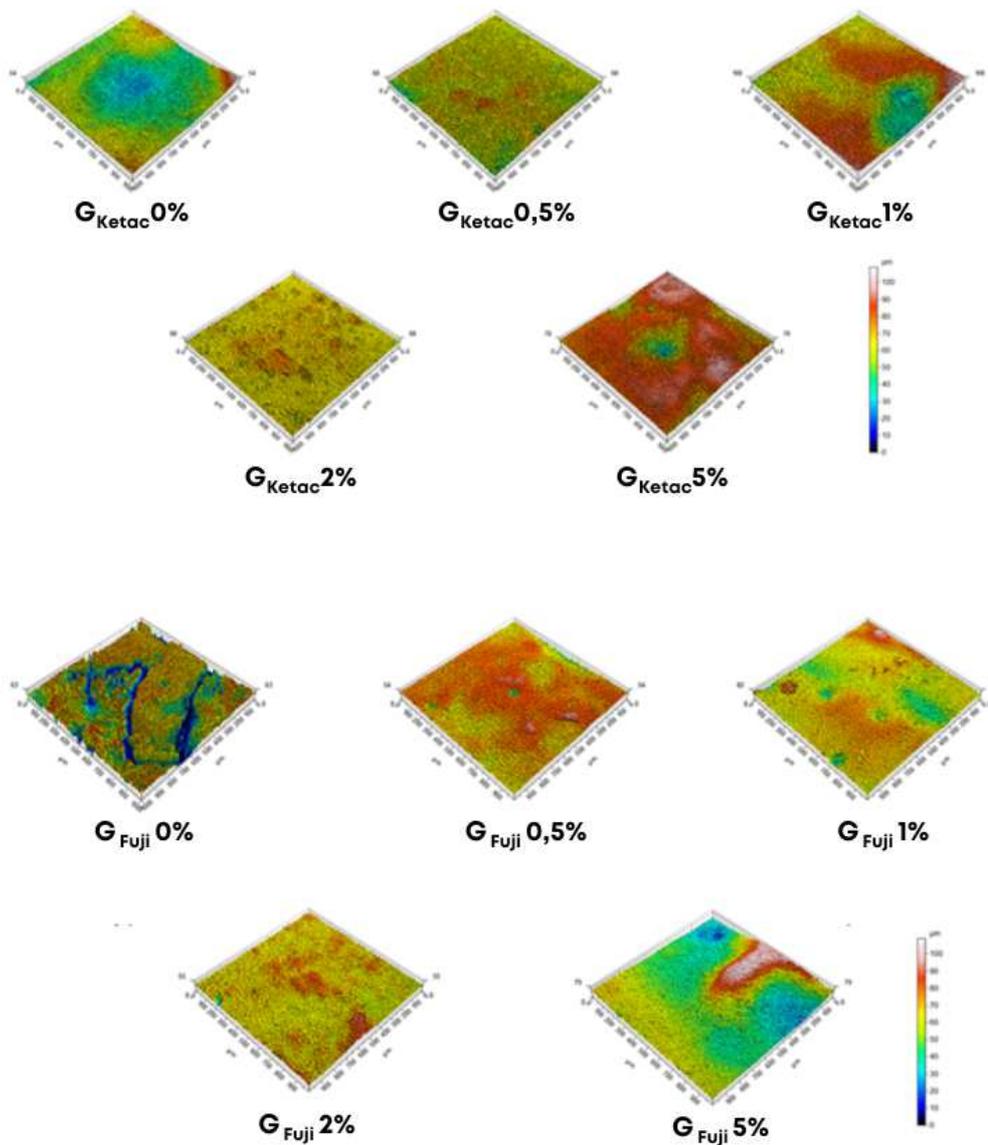


Figura 2: Imagens representativas da perfilometria de amostras de G_{Ketac} e G_{Fuji}

~

Tabela 2: Valores de rugosidade linear (Ra) e volumétrica (Sa)

<i>Perfilometria</i>			
<i>Material</i>	<i>Concentrações</i>	<i>Ra</i>	<i>Sa</i>
		<i>Média (DesvPad)</i>	<i>Média (DesvPad)</i>
G_{Ketac}	0%	4,09 ^{Aa} (0,25)	5,65 ^{Aa} (2,79)
	0,5 %	1,66 ^{Aa} (0,49)	1,84 ^{Aa} (0,46)
	1 %	2,53 ^{Aa} (0,63)	2,6 ^{Aa} (0,54)
	2 %	2,67 ^{Aa} (0,59)	3,67 ^{Aa} (1,31)
	5 %	3,22 ^{Aa} (0,38)	4,13 ^{Aa} (0,37)
G_{Fuji}	0%	2,84 ^{Aa} (0,73)	5,13 ^{Aa} (0,25)
	0,5 %	1,85 ^{Aa} (0,40)	2,51 ^{Aa} (0,93)
	1 %	1,71 ^{Aa} (0,37)	1,9 ^{Aa} (0,05)
	2 %	1,67 ^{Aa} (0,33)	3,32 ^{Aa} (0,90)
	5 %	1,84 ^{Aa} (0,17)	2,67 ^{Aa} (0,23)

Letras maiúsculas diferentes, indicam diferença estatística dentro dos grupos.

Letras minúsculas diferentes indicam diferença estatística entre os grupos.

Atividade antimicrobiana

O teste de formação de halo não evidenciou atividade antimicrobiana contra *Streptococcus mutans* quando avaliadas as diferentes amostras dos grupos controle (*grafeno free*) e experimentais (0,5%; 1%; 2% e 5%) de G_{Ketac} e G_{Fuji}. Foi observada formação de halo de inibição apenas no controle positivo com o gel de clorexidina a 0,2% (Perioxidin Gel®) de 7,54 ($\pm 0,63$) mm.

Análise da radiopacidade

Clinicamente, pôde ser observado que os CIV modificados sofreram alteração em suas colorações passando da cor A3 para uma coloração cinza escura.

De acordo com a escala de cinza e com os valores médios obtidos para cada grupo de G_{Ketac} e G_{Fuji} pode-se afirmar que a radiopacidade foi estatisticamente menor em G_{Fuji} 0,5% ($p < 0,05$) (Tabela 3). Para G_{Ketac}, em todas suas concentrações e para as demais concentrações de G_{Fuji}, não houve diferença estatística na radiopacidade das amostras.

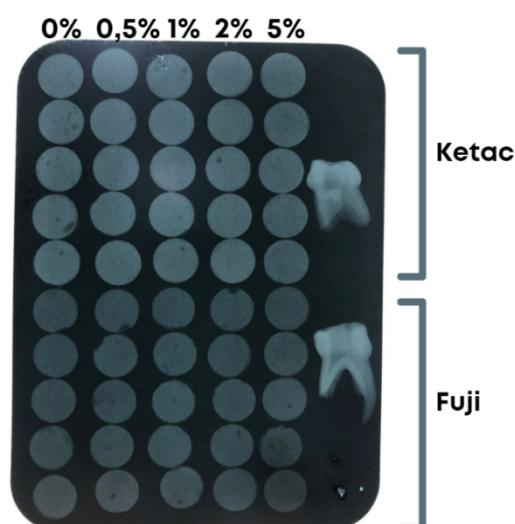


Figura 3: Imagem representativa do teste de radiopacidade que mostra a disposição das amostras em película oclusal, digitalização e transporte para programa CorelDRAW Graphics Suite 2017® para medir radiopacidade através de intensidade de cinza.

Tabela 3: Valores médios de cinza obtidos para cada amostra e suas respectivas concentrações de ionômero/grafeno.

		<i>Valores de cinza</i>				
<i>Material</i>	<i>Cálculos</i>	<i>0%</i>	<i>0,5%</i>	<i>1%</i>	<i>2%</i>	<i>5%</i>
G_{Ketac}	Média	49,00 ^{Aa}	49,00 ^{Aa}	48,25 ^{Aa}	45,75 ^{Aa}	45,5 ^{Aa}
	(DesvPad)	(±4,76)	(±2,58)	(±2,75)	(±8,22)	(±2,38)
G_{Fuji}	Média	64,25 ^{Ab}	64,00 ^{Aa}	63,00 ^{Ab}	56,75 ^{Aa}	47,75 ^{Ba}
	(DesvPad)	(±2,22)	(±1,41)	(±7,87)	(±7,93)	(±6,02)

Letras maiúsculas diferentes, indicam diferença estatística dentro dos grupos.

Letras minúsculas diferentes indicam diferença estatística entre os grupos.

Análise de solubilidade e sorção de água

Os dados obtidos mostraram que, no geral, houve redução na taxa de solubilidade dos espécimes de G_{Ketac} e G_{Fuji} com a incorporação de grafeno após 21 dias. Os resultados foram mais expressivos para o G_{Fuji}, no qual predominou uma relação inversamente proporcional entre a concentração de grafeno e a taxa de solubilidade.

Tabela 4: Análise dos testes de solubilidade das amostras após 24 horas, 7, 14 e 21 dias.

		<i>Solubilidade</i>			
<i>Material</i>	<i>Concentração</i>	<i>%S 24h</i>	<i>%S 7d</i>	<i>%S 14d</i>	<i>%S 21d</i>
G_{Ketac}	0%	3,80	3,61	3,21	3,00
	0,5%	3,98	3,98	3,49	4,06

	1%	3,88	3,56	3,36	3,06
	2%	3,82	3,11	2,78	2,90
	5%	3,99	3,41	3,25	3,39
G_{Fuji}	0%	2,40	2,03	1,96	1,74
	0,5%	10,84	11,10	10,55	10,45
	1%	3,47	1,95	3,05	8,37
	2%	3,88	3,97	3,22	3,16
	5%	1,15	1,91	0,87	0,51

Para a análise de sorção de água, o G_{Ketac} não apresentou tempo, nem concentração dependentes. Em contrapartida, no G_{Fuji} Fuji, na maioria das concentrações avaliadas, o aumento da concentração de grafeno levou à redução da sorção ao longo do tempo.

Tabela 5: Análise dos testes de sorção de água das amostras após 24 horas, 7, 14 e 21 dias.

<i>Sorção de água</i>					
<i>Material</i>	<i>Concentração</i>	<i>%S 24h</i>	<i>%S 7d</i>	<i>%S 14d</i>	<i>%S 21d</i>
G_{Ketac}	0%	3,72	3,51	3,16	2,95
	0,5%	3,85	3,92	3,43	4,01
	1%	3,72	3,49	3,27	3,03
	2%	3,68	2,94	2,71	2,85
	5%	3,83	3,25	3,13	3,29
G_{Fuji}	0%	2,37	1,98	1,92	1,70
	0,5%	11,42	11,34	10,97	10,79
	1%	3,44	1,91	2,98	8,16
	2%	3,84	3,82	3,14	3,07
	5%	1,11	1,81	0,84	0,49

Microdureza Vickers

A análise estatística dos resultados do teste de microdureza Vickers (Tabela 6) não indicou alteração na microdureza das amostras com a incorporação do grafeno, exceto para G_{Fuji} 5% que apresentou redução em sua microdureza, com diferença estatística (Figura 4).

Tabela 6: Análise da média e desvio padrão das amostras em ensaio de microdureza Vickers.

<i>Microdureza Vickers</i>						
<i>Material</i>	<i>Cálculos</i>	<i>0%</i>	<i>0,5%</i>	<i>1%</i>	<i>2%</i>	<i>5%</i>
G_{Ketac}	Média	59,23 ^{Aa}	62,01 ^{Aa}	65,28 ^{Aa}	59,66 ^{Aa}	52,31 ^{Aa}
	DesvPad	(±7,24)	(±14,57)	(±11,56)	(±15,23)	(±6,69)
G_{Fuji}	Média	79,17 ^{Ab}	67,55 ^{Aa}	68,41 ^{Aa}	62,70 ^{Aa}	53,03 ^{Ba}

	Desvpad	(±5,76)	(±3,66)	(±5,25)	(±10,15)	(±5,32)
--	---------	---------	---------	---------	----------	---------

Letras maiúsculas diferentes indicam diferença estatística dentro dos grupos.

Letras minúsculas diferentes indicam diferença estatística entre os grupos.

Análise de liberação de flúor

A incorporação do grafeno demonstrou uma tendência a aumentar a liberação do flúor para o G_{Ketac}, apresentando efeito dose-dependente. Em contrapartida, para G_{Fuji}, uma maior liberação de flúor foi encontrada em concentrações extremas (G_{Fuji} 0% e G_{Fuji} 5%) e, ao compará-las, G_{Fuji} 5% apresentou maior liberação de flúor em sua totalidade (Tabela 7). A liberação entre G_{Ketac} e G_{Fuji} foi semelhante ($p > 0,05$), exceto para G_{Fuji} 0%, em que foi observada maior liberação após 24h e 7 dias.

Com relação aos tempos estudados, observou-se maior liberação de flúor no período de 7 dias para a maior parte dos grupos, havendo queda em 14 e 21 dias. A relação tempo/concentração de grafeno/liberação de flúor em G_{Ketac} foi diretamente proporcional no período de 7 dias. O G_{Fuji} não apresentou padrão na relação tem concentração (Figura 5).

Tabela 7: Análise do teste de liberação de flúor das amostras após 24 horas, 7, 14, 21 e 28 dias.

		<i>Liberação de flúor</i>				
	<i>Concentração</i>	<i>24h</i>	<i>7d</i>	<i>14d</i>	<i>21d</i>	<i>28d</i>
		<i>Média (DP)</i>	<i>Média (DP)</i>	<i>Média (DP)</i>	<i>Média (DP)</i>	<i>Média (DP)</i>
G_{Ketac}	0%	0,37 (0,07) ^{Aa}	0,84 (0,05) ^{Ba}	0,62 (0,23) ^{Ba}	0,38 (0,10) ^{Aa}	0,27 (0,06) ^{Ca}
	0,5%	0,47 (0,05) ^{Aa}	0,91 (0,07) ^{Ba}	0,48 (0,04) ^{Ca}	0,31 (0,02) ^{Da}	0,27 (0,01) ^{Ea}
	1%	0,57 (0,06) ^{Aa}	1,07 (0,14) ^{Ba}	0,59 (0,10) ^{Aa}	0,38 (0,06) ^{Ca}	0,32 (0,04) ^{Da}
	2%	0,56 (0,06) ^{Aa}	1,18 (0,02) ^{Ba}	0,69 (0,04) ^{Ca}	0,44 (0,04) ^{Aa}	0,36 (0,03) ^{Da}
	5%	0,80 (0,25) ^{Aa}	1,72 (0,46) ^{Ba}	0,97 (0,40) ^{Ca}	0,65 (0,26) ^{Da}	0,46 (0,16) ^{Ea}
G_{Fuji}	0%	1,04 (0,51) ^{Ab}	1,54 (0,48) ^{Ba}	0,79 (0,37) ^{Cb}	0,52 (0,20) ^{Db}	0,34 (0,10) ^{Ea}
	0,5%	0,55 (0,07) ^{Aa}	0,87 (0,07) ^{Ba}	0,37 (0,04) ^{Cb}	0,28 (0,02) ^{Da}	0,20 (0,02) ^{Eb}
	1%	0,55 (0,07) ^{Aa}	1,08 (0,12) ^{Ba}	0,48 (0,08) ^{Aa}	0,31 (0,05) ^{Ca}	0,23 (0,03) ^{Db}
	2%	0,63 (0,17) ^{Aa}	1,11 (0,12) ^{Ba}	0,06 (0,09) ^{Cb}	0,33 (0,04) ^{Da}	0,24 (0,02) ^{Db}
	5%	0,84 (0,20) ^{Aa}	1,63 (0,27) ^{Ba}	0,70 (0,16) ^{ACa}	0,45 (0,08) ^{BDa}	0,36 (0,07) ^{BEa}

Letras maiúsculas diferentes, indicam diferença estatística no mesmo grupo ao longo do tempo.

Letras minúsculas diferentes indicam diferença estatística entre os grupos no mesmo intervalo de tempo.

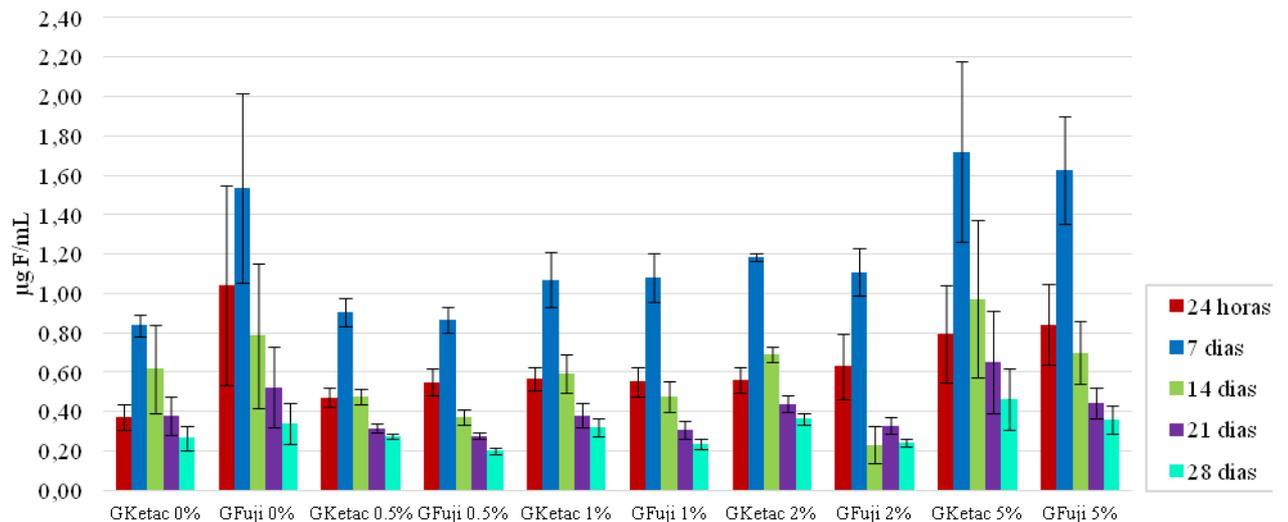


Figura 4: Liberação de flúor do G_{Ketac} e G_{Fuji} (0%, 0,5%, 1%, 2% e 5%) após 24horas, 7, 14, 21 e 28 dias.

DISCUSSÃO

Os CIV são materiais amplamente utilizados na odontologia, mas carecem de melhoras em algumas propriedades. O grafeno é uma substância com potencial utilização odontológica e pesquisas revelam que sua incorporação a materiais dentários tende a melhorar seus desempenhos. O presente estudo avaliou a atividade antimicrobiana, radiopacidade, sorção e solubilidade, microdureza Vickers e a liberação de flúor de dois tipos de CIV autopolimerizáveis de dois cimentos de ionômero de vidro autopolimerizáveis disponíveis no mercado internacional - Ketac Molar e Fuji IX, que apresentam excelentes propriedades e são considerados padrão-ouro. Os CIV foram modificados com diferentes concentrações de grafeno (0.5, 1, 2, 5%) em forma pó (Sigma Aldrich, Estados Unidos da América).

Pesquisas recentes com nanomateriais à base de grafeno estabelecem atividade antibacteriana para *Streptococcus mutans* (He, Zhu et al. 2015, Zhao, Shan et al. 2020, Eshaghi Gorji, Seyedmajidi et al. 2021, Mao, Zhang et al. 2021, Wu et al. 2020) e esta depende do tamanho físico da estrutura e o número de camadas de nanofolhas (Tu, Lv et al. 2013, Syama and Mohanan 2016, Al-Jumaili, Alancherry et al. 2017). Uma das teorias é que sua estrutura laminar penetra facilmente a membrana das células das bactérias através de forças físicas (*Van der Waals*), rompendo-as e causando sua morte celular (Zhou and Gao

2014, Hegab, ElMekawy et al. 2016), mas ainda não é totalmente compreendido como o grafeno e seus derivados podem causar a desativação dos microrganismos. Diferentemente desses achados, o presente estudo não encontrou atividade antimicrobiana nos espécimes analisados. Investigações adicionais e novos estudos experimentais com outros tipos de teste de atividade antibacteriana devem ser realizados a fim de elucidar claramente se o grafeno inibe *Streptococcus mutans* em pequenas quantidades. Ademais, uma possível razão pela qual o presente estudo observou resultados diferentes, pode ser a forma de grafeno utilizada. Os autores acima reportados não usaram o pó de grafeno, como na presente pesquisa, mas em sua maioria foi usado óxido de grafeno e outros derivados.

A literatura reforça a importância da radiopacidade em materiais restauradores, o que possibilita ao clínico a avaliação da integridade da restauração, averiguação de falhas, saliências, detecção de vazios, contornos adequados ou até mesmo a localização de fragmentos extraviados em caso de acidentes traumáticos ou procedimentos operatórios (Hitij and Fidler 2013). No presente trabalho, foi observado que o grafeno diminuiu a radiopacidade de G_{Fuji}5%, mas ainda assim o material era visível em tomadas radiográficas e de fácil identificação. Pedrosa et al. (2011) relata que materiais dentários com valores de radiopacidade muito altos podem dificultar a detecção de áreas radiolúcidas adjacentes à restauração e mascarar lesões cariosas devido à superposição (Pedrosa, Brasileiro et al. 2011). Yaylaci et al (2021) realizaram um estudo que testava diferentes materiais restauradores odontológicos com diversas espessuras e concluíram a espessura influenciou estatisticamente os resultados (Yaylaci, Karaarslan et al. 2021). Para testes futuros, o ajuste das espessuras seria um ponto a ser estudado, a fim de se obter um material com a radiopacidade ideal que permita sua identificação, no entanto sem prejudicar a visualização de possíveis alterações no tecido dental ao seu redor.

Os CIV's possuem uma hipersensibilidade à umidade, uma vez que por hidrólise da matriz de cimento, a sorção de água leva à degradação ao longo do tempo e à perda de propriedades da superfície, integridade da borda, aparência estética e conseqüentemente aumento das deteriorações nas restaurações (Aydın, Karaoğlanoğlu et al. 2020). O processo de sorção de água pode ser explicado por duas teorias. Uma hipótese é que as moléculas de água se difundem em micro vazios e interagem com a matriz do material e a outra propõe que as moléculas de água se ligam aos grupos hidrofílicos do cimento, resultando em expansão e aumento de peso (Muller et al. 2017). A solubilidade também é um importante aspecto a ser observado, pois ao entrar em contato com fluidos do meio bucal, os CIV podem se dissolver gradativamente, principalmente nas primeiras 24h de presa. A alta solubilidade e sinérese

inicial podem resultar em alteração dimensional, formação de poros e redução das propriedades mecânicas (Brito et al. 2010). A adição do grafeno em G_{Ketac} não alterou a sorção de água, mas mostrou redução em sua solubilidade após 21 dias. Já para G_{Fuji} , a modificação pelo grafeno resultou em menor sorção de água e solubilidade, resultando em um material com essas propriedades melhoradas ao longo do tempo.

Os materiais restauradores devem apresentar dureza suficiente para serem resistentes às forças mastigatórias. Um estudo realizado por Sun et al. (2018) concluiu que adição de derivados do grafeno em CIV melhorou suas propriedades mecânicas, tal como a microdureza. Os achados da presente pesquisa corroboram com Sun et al (2018). O teste de microdureza Vickers indicou que a incorporação do grafeno aumentou diminuiu a microdureza de G_{Fuji} 5%. Uma das premissas para tal feito seria a quantidade e a forma de grafeno que foi incorporada. A literatura é bem sedimentada no que concerne a liberação de flúor dos CIV por um longo período de tempo e que possuem o potencial de recarregar flúor (De Moor et al. 1996, Seppa et al. 1993), promovendo o benefício anticárie (Cury et al. 2019). De forma assertiva, os resultados do presente estudo indicaram que a incorporação do grafeno aumentou a liberação do flúor para o G_{Ketac} e G_{Fuji} com efeito dose-dependente, ou seja, quanto maior a concentração de grafeno na amostra, maior é a liberação de flúor. As análises demonstraram que o período de 7 dias é onde ocorre o pico da liberação para a maioria das amostras. A maior liberação nesse período possivelmente se deu porque apesar do período inicial, de 24h, ser esperado uma maior liberação, foi um tempo de acúmulo inferior ao período subsequente, que teve 7 dias consecutivos de duração. Para que um novo material odontológico seja consolidado no mercado, inúmeros testes devem ser realizados. Este estudo in vitro foi de suma importância, sendo essencial e a fase inicial para melhor elucidar o comportamento dos cimentos de ionômero de vidro reforçados com grafeno e garantir a segurança de seu uso para futura incorporação em ensaios clínicos. Dentre as limitações do presente estudo, uma podemos citar a coloração acinzentada após reforço com grafeno. Nesse sentido, este material deve ser estudado mais a fundo para avaliar sua aceitabilidade em restaurações e no que diz respeito a possíveis modificações para que a coloração fique mais parecida com a cor do substrato dentário.

Diante desses achados, pode-se dizer que incorporação do grafeno ao CIV teve resultados favoráveis na maioria dos testes. É importante ressaltar que os ensaios foram realizados em ambiente de laboratório controlado, não sendo possível reconstruir as características reais da cavidade bucal. Novas pesquisas devem ser realizadas a fim de

esclarecer e delimitar de forma mais específica as propriedades dos CIV modificados com grafeno.

Agradecimentos

Os autores agradecem a FAPERJ pela bolsa de estudos concedida (T.R.S e L.S.V.F) e pelos equipamentos adquiridos para o Laboratório Multiusuário de Ensaio mecânicos da Faculdade de Odontologia da UERJ através do projeto E-26/210.101/2018 – “Apoio às Universidades Estaduais do Rio de Janeiro - UERJ, UENF, UEZO – 2018”. Os autores também agradecem ao Laboratório Multidisciplinar de Pesquisa em Odontologia da Faculdade de Odontologia da UFRJ (FO/UFRJ) pela infraestrutura disponibilizada para a realização de parte dos experimentos. Este trabalho faz parte da dissertação de mestrado da aluna Tatiane Ramos dos Santos.

REFERÊNCIAS

- Al-Angari, S. S., A. T. Hara, T. M. Chu, J. Platt, G. Eckert and N. B. Cook (2014). "Physicomechanical properties of a zinc-reinforced glass ionomer restorative material." J Oral Sci **56**(1): 11-16.
- Al-Jumaili, A., S. Alancherry, K. Bazaka and M. V. Jacob (2017). "Review on the Antimicrobial Properties of Carbon Nanostructures." Materials (Basel) **10**(9).
- Aydın, N., S. Karaoğlanoğlu, E. Aybala-Oktay, S. Çetinkaya and O. Erdem (2020). "Investigation of water sorption and aluminum releases from high viscosity and resin modified glass ionomer." J Clin Exp Dent **12**(9): e844-e851.
- Chen, J., Q. Zhao, J. Peng, X. Yang, D. Yu and W. Zhao (2020). "Antibacterial and mechanical properties of reduced graphene-silver nanoparticle nanocomposite modified glass ionomer cements." J Dent **96**: 103332-103332.
- Ching, H. S., N. Luddin, T. P. Kannan, I. Ab Rahman and N. R. N. Abdul Ghani (2018). "Modification of glass ionomer cements on their physical-mechanical and antimicrobial properties." J Esthet Restor Dent **30**(6): 557-571.
- Eshaghi Gorji, F., M. Seyedmajidi, F. Asgharpours, H. Tashakorian, A. A. Moghadamnia, S. Kazemi and H. Alaghehmand (2021). "Oral mucosa and Streptococcus mutans count in the saliva. Does graphene oxide nanoparticle mouthwash have a good effect?" Caspian J Intern Med **12**(3): 342-349.
- Fonseca, A. S., K. M. Gerhardt, G. D. Pereira, M. A. Sinhoreti and L. F. Schneider (2013). "Do new matrix formulations improve resin composite resistance to degradation processes?" Braz Oral Res **27**(5): 410-416.

Garoushi, S., P. Vallittu and L. Lassila (2017). "Hollow glass fibers in reinforcing glass ionomer cements." Dent Mater **33**(2): e86-e93.

Gu, Y. W., A. U. J. Yap, P. Cheang, Y. L. Koh and K. A. Khor (2005). "Development of zirconia-glass ionomer cement composites." Journal of Non Crystalline Solids **351**: 508-508.

He, J., X. Zhu, Z. Qi, C. Wang, X. Mao, C. Zhu, Z. He, M. Li and Z. Tang (2015). "Killing dental pathogens using antibacterial graphene oxide." ACS Appl Mater Interfaces **7**(9): 5605-5611.

Hegab, H. M., A. ElMekawy, T. G. Barclay, A. Michelmore, L. Zou, C. P. Saint and M. Ginic-Markovic (2016). "Single-Step Assembly of Multifunctional Poly(tannic acid)-Graphene Oxide Coating To Reduce Biofouling of Forward Osmosis Membranes." ACS Appl Mater Interfaces **8**(27): 17519-17528.

Hitij, T. and A. Fidler (2013). "Radiopacity of dental restorative materials." Clin Oral Investig **17**(4): 1167-1177.

Hume, W. R. and G. J. Mount.

Hume, W. R. and G. J. Mount (1988). "In vitro studies on the potential for pulpal cytotoxicity of glass-ionomer cements." J Dent Res **67**(6): 915-918.

Innes NP, Manton DJ. Minimum intervention children's dentistry - the starting point for a lifetime of oral health. Br Dent J. 2017 Aug 11;223(3):205-213. doi: 10.1038/sj.bdj.2017.671. PMID: 28798464.

Lee, C., X. Wei, J. W. Kysar and J. Hone (2008). "Measurement of the Elastic Properties and Intrinsic Strength of Monolayer Graphene." Science **321**(5887): 385-388.

Lucas, M. E., K. Arita and M. Nishino (2003). "Toughness, bonding and fluoride-release properties of hydroxyapatite-added glass ionomer cement." Biomaterials **24**(21): 3787-3794.

Mao, M., W. Zhang, Z. Huang, J. Huang, J. Wang, W. Li and S. Gu (2021). "Graphene Oxide-Copper Nanocomposites Suppress Cariogenic *Streptococcus mutans* Biofilm Formation." Int J Nanomedicine **16**: 7727-7739.

Martins, B. M. C., E. Silva, D. Ferreira, K. R. Reis and T. Fidalgo (2018). "Longevity of defective direct restorations treated by minimally invasive techniques or complete replacement in permanent teeth: A systematic review." J Dent **78**: 22-30.

Mitra, S. B. (1991). "Adhesion to dentin and physical properties of a light-cured glass-ionomer liner/base." J Dent Res **70**(1): 72-74.

Murdoch-Kinch, C. A. and M. E. McLean (2003). "Minimally invasive dentistry." J Am Dent Assoc **134**(1): 87-95.

Najeed, S., Z. Khurshid, M. S. Zafar, A. S. Khan, S. Zohaib, J. M. N. Martí, S. Sauro, J. P. Matinlinna and I. U. Rehman (2016). "Modifications in Glass Ionomer Cements: Nano-Sized Fillers and Bioactive Nanoceramics." International Journal of Molecular Sciences **17**(7): 1134.

- Novoselov, K. S., V. I. Fal'ko, L. Colombo, P. R. Gellert, M. G. Schwab and K. Kim (2012). "A roadmap for graphene." Nature **490**(7419): 192-200.
- Paiva, L., T. K. S. Fidalgo, L. P. da Costa, L. C. Maia, L. Balan, K. Anselme, L. Ploux and R. Thire (2018). "Antibacterial properties and compressive strength of new one-step preparation silver nanoparticles in glass ionomer cements (NanoAg-GIC)." J Dent **69**: 102-109.
- Paiva, L. F., T. K. Fidalgo and L. C. Maia (2014). "Mineral content of ionomer cements and preventive effect of these cements against white spot lesions around restorations." Brazilian oral research **28**(1).
- Pedrosa, R. F., I. V. Brasileiro, M. L. dos Anjos Pontual, A. dos Anjos Pontual and M. M. da Silveira (2011). "Influence of materials radiopacity in the radiographic diagnosis of secondary caries: evaluation in film and two digital systems." Dentomaxillofac Radiol **40**(6): 344-350.
- Shafiei, F., M. Doozandeh and D. Ghaffaripour (2018). "Effect of Different Liners on Fracture Resistance of Premolars Restored with Conventional and Short Fiber-Reinforced Composite Resins." J Prosthodont.
- Sidhu, S. K. and J. W. Nicholson (2016). "A Review of Glass-Ionomer Cements for Clinical Dentistry." J Funct Biomater **7**(3).
- Silva, R. M., F. V. Pereira, F. A. Mota, E. Watanabe, S. M. Soares and M. H. Santos (2016). "Dental glass ionomer cement reinforced by cellulose microfibers and cellulose nanocrystals." Mater Sci Eng C Mater Biol Appl **58**: 389-395.
- Simmons, J. J. (1983). "The miracle mixture. Glass ionomer and alloy powder." Tex Dent J **100**(10): 6-12.
- Sun, L., Z. Yan, Y. Duan, J. Zhang and B. Liu (2018). "Improvement of the mechanical, tribological and antibacterial properties of glass ionomer cements by fluorinated graphene." Dent Mater **34**(6): e115-e127.
- Syama, S. and P. V. Mohanan (2016). "Safety and biocompatibility of graphene: A new generation nanomaterial for biomedical application." Int J Biol Macromol **86**: 546-555.
- Tiwari, S., M. Kenchappa, D. Bhayya, S. Gupta, S. Saxena, S. Satyarth, A. Singh and M. Gupta (2016). "Antibacterial Activity and Fluoride Release of Glass-Ionomer Cement, Compomer and Zirconia Reinforced Glass-Ionomer Cement." J Clin Diagn Res **10**(4): ZC90-93.
- Tu, Y., M. Lv, P. Xiu, T. Huynh, M. Zhang, M. Castelli, Z. Liu, Q. Huang, C. Fan, H. Fang and R. Zhou (2013). "Destructive extraction of phospholipids from Escherichia coli membranes by graphene nanosheets." Nat Nanotechnol **8**(8): 594-601.
- Uysal, T., F. A. Basciftci, Y. Sener, M. S. Botsali and A. Demir (2008). "Conventional and high intensity halogen light effects on water sorption and microhardness of orthodontic adhesives." Angle Orthod **78**(1): 134-139.
- Walsh, L. J. and A. M. Brostek (2013). "Minimum intervention dentistry principles and objectives." Aust Dent J **58 Suppl 1**: 3-16.

Wang, Y. and B. W. Darvell (2009). "Hertzian load-bearing capacity of a ceramic-reinforced glass ionomer cement stored wet and dry." Dent Mater **25**(8): 952-955.

Wiegand, A., W. Buchalla and T. Attin (2007). "Review on fluoride-releasing restorative materials--fluoride release and uptake characteristics, antibacterial activity and influence on caries formation." Dent Mater **23**(3): 343-362.

Yaylaci, A., E. S. Karaarslan and H. Hatirli (2021). "Evaluation of the radiopacity of restorative materials with different structures and thicknesses using a digital radiography system." Imaging Sci Dent **51**(3): 261-269.

Zhao, M., T. Shan, Q. Wu and L. Gu (2020). "The Antibacterial Effect of Graphene Oxide on *Streptococcus mutans*." J Nanosci Nanotechnol **20**(4): 2095-2103.

Zhou, R. and H. Gao (2014). "Cytotoxicity of graphene: recent advances and future perspective." Wiley Interdiscip Rev Nanomed Nanobiotechnol **6**(5): 452-474.

2 CONSIDERAÇÕES FINAIS

O ensaio *in vitro* foi realizado para avaliar propriedades físico-mecânicas, químicas e biológicas decorrentes da incorporação de grafeno (0,5%; 1%; 2%; 5%) em dois tipos de cimentos de ionômero de vidro autopolimerizáveis. Os resultados foram favoráveis em sua maioria.

Os CIV reforçados com grafeno apresentaram redução na sorção de água e solubilidade, aumento da microdureza (apenas para G_{Ketac}0,5 e G_{Ketac} 1%) e aumento da liberação de flúor. A ligeira diminuição na radiopacidade parece não impactar clinicamente o diagnóstico por meio de radiografias. Não foi observado potencial antimicrobiano, o que não inviabiliza o uso deste material. As propriedades mecânicas devem ser melhores estudadas para que se tenha maior ciência do comportamento desses materiais.

Pode-se considerar como limitação deste estudo a não realização de ensaios de biocompatibilidade, como a citotoxicidade nesse momento inicial. Estudos *in vitro* nem sempre reproduzem com fidedignidade os eventos biológicos que ocorrem no ambiente *in vivo*. Por esta razão, em um segundo momento, planeja-se realizar ensaios de biocompatibilidade biológica, assim como ensaios clínicos para que haja maior compreensão do material em condições fisiológicas. Almeja-se a possibilidade de que o CIV reforçado por grafeno se torne uma nova opção de material restaurador no mercado odontológico, caso apresentem bom comportamento e boas propriedades em cavidade bucal relatadas pós-ensaios.

CONCLUSÃO

A incorporação do grafeno em diferentes proporções (0,5%; 1%; 2%; 5%) a G_{Ketac} e G_{Fuji} resultou em:

- Ausência de potencial antimicrobiano em ambos os grupos;
- Ligeira diminuição de radiopacidade em ambos os grupos;
- Diminuição na solubilidade e na sorção de água para ambos os grupos;
- Aumento da microdureza de G_{Ketac} 0,5 e 1% e diminuição de microdureza de G_{Fuji} ;
- Aumento da liberação de flúor em 7 dias para ambos os grupos.

REFERÊNCIAS

- AL-ANGARI, S. S.; HARA, A. T.; CHU, T. M.; PLATT, J. *et al.* Physicomechanical properties of a zinc-reinforced glass ionomer restorative material. **J Oral Sci**, 56, n. 1, p. 11-16, 2014.
- AL-JUMAILI, A.; ALANCHERRY, S.; BAZAKA, K.; JACOB, M. V. Review on the Antimicrobial Properties of Carbon Nanostructures. **Materials (Basel)**, 10, n. 9, 2017.
- AMMARI, M. M.; MOLITERNO, L. F.; HIRATA JUNIOR, R.; SELLOS, M. C. *et al.* Efficacy of chemomechanical caries removal in reducing cariogenic microbiota: a randomized clinical trial. **Braz Oral Res**, 28, 2014.
- BOECKH, C.; SCHUMACHER, E.; PODBIELSKI, A.; HALLER, B. Antibacterial activity of restorative dental biomaterials in vitro. **Caries Res**, 36, n. 2, p. 101-107, 2002.
- CHEN, J.; ZHAO, Q.; PENG, J.; YANG, X. *et al.* Antibacterial and mechanical properties of reduced graphene-silver nanoparticle nanocomposite modified glass ionomer cements. **J Dent**, 96, p. 103332-103332, 2020.
- CHING, H. S.; LUDDIN, N.; KANNAN, T. P.; AB RAHMAN, I. *et al.* Modification of glass ionomer cements on their physical-mechanical and antimicrobial properties. **J Esthet Restor Dent**, 30, n. 6, p. 557-571, 2018.
- CURY, J. A.; DE OLIVEIRA, B. H.; DOS SANTOS, A. P.; TENUTA, L. M. Are fluoride releasing dental materials clinically effective on caries control? **Dent Mater**, 32, n. 3, p. 323-333, 2016.
- DAVIDOVICH, E.; WEISS, E.; FUKS, A. B.; BEYTH, N. Surface antibacterial properties of glass ionomer cements used in atraumatic restorative treatment. **J Am Dent Assoc**, 138, n. 10, p. 1347-1352, 2007.
- DE ALENCAR, N. A.; FIDALGO, T. K.; CAJAZEIRA, M. R.; MAIA, L. C. Influence of the number of adhesive layers on adhesive interface properties under cariogenic challenge using streptococcus mutans. **J Adhes Dent**, 16, n. 4, p. 339-346, Aug 2014.
- DUBEY, N.; RAJAN, S. S.; BELLO, Y. D.; MIN, K. S. *et al.* Graphene Nanosheets to Improve Physico-Mechanical Properties of Bioactive Calcium Silicate Cements. **Materials (Basel)**, 10, n. 6, 2017.

FONSECA, A. S.; GERHARDT, K. M.; PEREIRA, G. D.; SINHORETI, M. A. *et al.* Do new matrix formulations improve resin composite resistance to degradation processes? **Braz Oral Res**, 27, n. 5, p. 410-416, 2013.

GAROUSHI, S.; VALLITTU, P.; LASSILA, L. Hollow glass fibers in reinforcing glass ionomer cements. **Dent Mater**, 33, n. 2, p. e86-e93, 2017.

GU, Y. W.; YAP, A. U. J.; CHEANG, P.; KOH, Y. L. *et al.* Development of zirconia-glass ionomer cement composites. **Journal of Non Crystalline Solids**, 351, p. 508-508, 2005.

HE, J.; ZHU, X.; QI, Z.; WANG, C. *et al.* Killing dental pathogens using antibacterial graphene oxide. **ACS Appl Mater Interfaces**, 7, n. 9, p. 5605-5611, Mar 11 2015.

HUME, W. R.; MOUNT, G. J.

HUME, W. R.; MOUNT, G. J. In vitro studies on the potential for pulpal cytotoxicity of glass-ionomer cements. **J Dent Res**, 67, n. 6, p. 915-918, 1988.

LEE, C.; WEI, X.; KYSAR, J. W.; HONE, J. Measurement of the Elastic Properties and Intrinsic Strength of Monolayer Graphene. **Science**, 321, n. 5887, p. 385-388, 2008.

LUCAS, M. E.; ARITA, K.; NISHINO, M. Toughness, bonding and fluoride-release properties of hydroxyapatite-added glass ionomer cement. **Biomaterials**, 24, n. 21, p. 3787-3794, Sep 2003.

MARTINS, B. M. C.; SILVA, E.; FERREIRA, D.; REIS, K. R. *et al.* Longevity of defective direct restorations treated by minimally invasive techniques or complete replacement in permanent teeth: A systematic review. **J Dent**, 78, p. 22-30, 2018.

MIANA, T. A.; FIDALGO, T. K.; PORTELA, M. B.; MAIA, L. C. Caries prevention and adhesiveness of restorative materials submitted to cariogenic mixed biofilm. **Gen Dent**, 62, n. 5, p. 71-74, Sep-Oct 2014.

MITRA, S. B. Adhesion to dentin and physical properties of a light-cured glass-ionomer liner/base. **J Dent Res**, 70, n. 1, p. 72-74, 1991.

MOHARAMZADEH, K.; BROOK, I. M.; VAN NOORT, R.; SCUTT, A. M. *et al.* Development, optimization and characterization of a full-thickness tissue engineered human oral mucosal model for biological assessment of dental biomaterials. **J Mater Sci Mater Med**, 19, n. 4, p. 1793-1801, 2008.

MONNERAT, A. F.; PONTES, D. G.; DE MELO, A. T. Microleakage of new all-in-one adhesive systems on dentinal and enamel margins. **Quintessence Int**, 33, n. 2, p. 136-139, 2002.

MURDOCH-KINCH, C. A.; MCLEAN, M. E. Minimally invasive dentistry. **J Am Dent Assoc**, 134, n. 1, p. 87-95, 2003.

NAJEEB, S.; KHURSHID, Z.; ZAFAR, M. S.; KHAN, A. S. *et al.* Modifications in Glass Ionomer Cements: Nano-Sized Fillers and Bioactive Nanoceramics. **International Journal of Molecular Sciences**, 17, n. 7, p. 1134, 2016.

NOVOSELOV, K. S.; FAL'KO, V. I.; COLOMBO, L.; GELLERT, P. R. *et al.* A roadmap for graphene. **Nature**, 490, n. 7419, p. 192-200, 2012.

PAIVA, L.; FIDALGO, T. K. S.; DA COSTA, L. P.; MAIA, L. C. *et al.* Antibacterial properties and compressive strength of new one-step preparation silver nanoparticles in glass ionomer cements (NanoAg-GIC). **J Dent**, 69, p. 102-109, Feb 2018.

PAIVA, L. F.; FIDALGO, T. K.; MAIA, L. C. Mineral content of ionomer cements and preventive effect of these cements against white spot lesions around restorations. **Braz Oral Res**, 28, 2014.

SHAFIEI, F.; DOOZANDEH, M.; GHAFFARIPOUR, D. Effect of Different Liners on Fracture Resistance of Premolars Restored with Conventional and Short Fiber-Reinforced Composite Resins. **J Prosthodont**, 2018.

SIDHU, S. K.; NICHOLSON, J. W. A Review of Glass-Ionomer Cements for Clinical Dentistry. **J Funct Biomater**, 7, n. 3, 2016.

SILVA, E.; CARVALHO, N. K.; GUBERMAN, M.; PRADO, M. *et al.* Push-out Bond Strength of Fast-setting Mineral Trioxide Aggregate and Pozzolan-based Cements: ENDOCEM MTA and ENDOCEM Zr. **J Endod**, 43, n. 5, p. 801-804, 2017.

SILVA, R. M.; PEREIRA, F. V.; MOTA, F. A.; WATANABE, E. *et al.* Dental glass ionomer cement reinforced by cellulose microfibers and cellulose nanocrystals. **Mater Sci Eng C Mater Biol Appl**, 58, p. 389-395, 2016.

SIMMONS, J. J. The miracle mixture. Glass ionomer and alloy powder. **Tex Dent J**, 100, n. 10, p. 6-12, 1983.

SOLIS MORE, Y.; PANELLA, G.; FIORAVANTI, G.; PERROZZI, F. *et al.* Biocompatibility of composites based on chitosan, apatite, and graphene oxide for tissue applications. **J Biomed Mater Res A**, 106, n. 6, p. 1585-1594, 2018.

SUN, L.; YAN, Z.; DUAN, Y.; ZHANG, J. *et al.* Improvement of the mechanical, tribological and antibacterial properties of glass ionomer cements by fluorinated graphene. **Dent Mater**, 34, n. 6, p. e115-e127, 2018.

SYAMA, S.; MOHANAN, P. V. Safety and biocompatibility of graphene: A new generation nanomaterial for biomedical application. **Int J Biol Macromol**, 86, p. 546-555, 2016.

TIWARI, S.; KENCHAPPA, M.; BHAYYA, D.; GUPTA, S. *et al.* Antibacterial Activity and Fluoride Release of Glass-Ionomer Cement, Compomer and Zirconia Reinforced Glass-Ionomer Cement. **J Clin Diagn Res**, 10, n. 4, p. ZC90-93, 2016.

TU, Y.; LV, M.; XIU, P.; HUYNH, T. *et al.* Destructive extraction of phospholipids from Escherichia coli membranes by graphene nanosheets. **Nat Nanotechnol**, 8, n. 8, p. 594-601, 2013.

TYAS, M. J.; ANUSAVICE, K. J.; FRENCKEN, J. E.; MOUNT, G. J. Minimal intervention dentistry--a review. FDI Commission Project 1-97. **Int Dent J**, 50, n. 1, p. 1-12, 2000.

WANG, Y.; DARVELL, B. W. Hertzian load-bearing capacity of a ceramic-reinforced glass ionomer cement stored wet and dry. **Dent Mater**, 25, n. 8, p. 952-955, 2009.

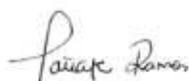
WIEGAND, A.; BUCHALLA, W.; ATTIN, T. Review on fluoride-releasing restorative materials--fluoride release and uptake characteristics, antibacterial activity and influence on caries formation. **Dent Mater**, 23, n. 3, p. 343-362, 2007.

ZHAO, M.; DAI, Y.; LI, X.; LI, Y. *et al.* Evaluation of long-term biocompatibility and osteogenic differentiation of graphene nanosheet doped calcium phosphate-chitosan AZ91D composites. **Mater Sci Eng C Mater Biol Appl**, 90, p. 365-378, 2018.

APENDICE - Autorização de inclusão de artigo na Biblioteca Digital de Teses e Dissertação da Universidade do Estado do Rio de Janeiro

Rio de Janeiro, 03 de outubro de 2023

Autorizo que conste o artigo intitulado "*Physical-mechanical, chemical and biological properties of graphene-reinforced glass ionomer cements*", de autoria de Tatiane Ramos dos Santos, Laura Soares Viana Fernandes, Karla Lorene de França Leite, Adilis Alexandria de França, Emmanuel Nogueira Leal da Silva, Lucianne Cople Maia e Tatiana Kelly da Silva Fidalgo no interior da dissertação de mestrado de Tatiane Ramos dos Santos intitulada "*Propriedades físico-mecânicas, químicas e biológicas de cimentos de ionômeros de vidro reforçados com grafeno*" a ser publicada pela Biblioteca da Universidade do Estado do Rio de Janeiro (UERJ) no acervo de teses e dissertações desta Universidade.



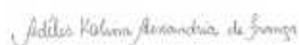
Tatiane Ramos dos Santos



Laura Soares Viana Fernandes



Karla Lorene de França Leite



Adilis Alexandria de França



Emmanuel Nogueira Leal da Silva



Lucianne Cople Maia



Tatiana Kelly da Silva Fidalgo



Sociedade Brasileira de Pesquisa Odontológica
Divisão Brasileira da IADR

CERTIFICADO

Certificamos que o trabalho **PN0328 - ATIVIDADE ANTIMICROBIANA, RADIOPACIDADE E PROPRIEDADES MECÂNICAS DE IONÔMEROS DE VIDRO REFORÇADOS COM GRAFENO** de Ramos TS*, Fernandes LSV, Leite KLF, Silva EJNL, Maia LC, Fidalgo TKS foi apresentado **na modalidade Painel Aspirante**

durante a 38ª Reunião Anual Virtual da Sociedade Brasileira de Pesquisa Odontológica no período de 08 a 11 de Setembro de 2021



SBPQO

Paulo Francisco César
Presidente

Valentim Adelino Ricardo Barão
Vice-Presidente

Resumo publicado em Anais SBPQO



08 a 11

SETEMBRO

VIRTUAL 2021

RESUMO Nº 1642

Apresentador:	Tatiane Ramos dos Santos	Categoria:	Sócio Aspirante
Modalidade:	Painel Aspirante	Área Relacionada:	4 - Odontopediatria
Universidade:	Faculdade de Odontologia - UERJ	E-mail:	tatianesantos@id.uff.br
Aceitou troca de modalidade?	Sim	Orientador:	Tatiana Kelly da Silva Fidalgo
Comitê de Ética:	Declarou que não necessitou de aprovação de comitê de ética/ comitê de experimentação em animais.		
Conflito de interesse:	Não há conflito de interesse		

Atividade antimicrobiana, radiopacidade e propriedades mecânicas de ionômeros de vidro reforçados com grafeno
Ramos TS*, Fernandes LSV, Leite KLF, Silva EJNL, Maia LC, Fidalgo TKS

Objetivou-se avaliar atividade antimicrobiana, radiopacidade e propriedades mecânicas de ionômeros de vidro puros e reforçados com grafeno. Foram incorporadas diferentes proporções de pó de grafeno (0%, 0,5%, 1%, 2% e 5%) a dois ionômeros autopolimerizáveis (Kt- Ketac, 3M e Fj - Fujii IX, GC). A atividade antimicrobiana foi avaliada pelo teste de halo de inibição (n=4) utilizando *Streptococcus mutans* (ATCC), sendo o controle positivo a clorexidina a 0,12%. Foi realizado teste de solubilidade e sorção de água (n=6) após 24h, 7, 14 e 21 dias nas amostras sem e com grafeno. Avaliou-se a radiopacidade (n=6) radiograficamente por meio da intensidade de cinza (IC) e a microdureza (n=6) Vickers (50g, 3 pontos/amostra). Os dados foram analisados descritiva e estatisticamente (ANOVA, seguido do teste de Tukey - p < 0,05). Não houve formação de halo nos diferentes grupos. A incorporação de grafeno reduziu a radiopacidade do Kt e Fj, com maior diferença entre Fj 0% (IC=64,25) e com 5% (IC=47,75) (p=0,002). Houve redução na taxa solubilidade de Kt e Fj com incorporação de grafeno após 21 dias, sendo a relação inversamente proporcional entre concentração de grafeno e solubilidade em Fj. Para sorção de água, o Kt não apresentou alterações com o tempo, nem com as concentrações. Fj apresentou redução da sorção com o passar do tempo e aumento da concentração. A incorporação de grafeno aumentou a microdureza do Kt a 0,5 e 1% e reduziu a do Fj em todas as concentrações.

O grafeno melhorou a dureza do Kt a 0,5 e 1%, sem alterar suas propriedades e reduziu a radiopacidade, solubilidade e sorção de água do Fj.

(Apoio: FAPs - FAPERJ Nº E-26/010.100941/2018)

Li, estou ciente e de acordo com todas as normas com relação à submissão e seleção; avaliação e apresentação; bem como publicação e premiação da 38ª Reunião Anual da SBPQO, disponível no Hotsite da Reunião. Estou ciente, também, que o resumo submetido foi revisado, todas as informações estão corretas e que não poderá ser alterado após a data limite de submissão (30/04/2021) e que, caso o trabalho seja selecionado para apresentação, o resumo publicado será exatamente como foi submetido.

Li e estou ciente das normas do prêmio Painel Aspirante.

Data/Hora de emissão: 07/02/2022 02:09

Artigo publicado fora do tema da dissertação



Pesquisa Brasileira em Odontopediatria e Clínica Integrada 2021; 21:e0010
<https://doi.org/10.1590/pboci.2021.152>
 ISSN 1519-0501 / eISSN 1983-4632



ORIGINAL ARTICLE

Assessment of Dental Caries and Intervention in the First Permanent Molars of Brazilian Children

Juliana Campos Chaves¹, Tatiane Ramos dos Santos¹, Mirian de Waele Souchois de Marsillac¹,
 Adilis Alexandria¹, Tatiana Kelly da Silva Fidalgo¹

¹Department of Preventive and Community Dentistry, State University of Rio de Janeiro, Rio de Janeiro, RJ, Brazil.

Correspondence: Tatiana Kelly da Silva Fidalgo, Boulevard Vinte e Oito de Setembro, 157, Vila Isabel, Rio de Janeiro, RJ, Brazil. 20551-030. E-mail: tatianaksfidalgo@gmail.com

Academic Editor: Ana Maria Gondim Valença

Received: 18 January 2021 / Review: 26 May 2021 / Accepted: 14 June 2021

How to cite: Chaves JC, Santos TR, Marsillac MWS, Alexandria A, Fidalgo TRS. Assessment of dental caries and intervention in the first permanent molars of Brazilian children. *Pesqui Bras Odontopediatria Clin Integr.* 2021; 21:e0010. <https://doi.org/10.1590/pboci.2021.152>

ABSTRACT

Objective: To evaluate the prevalence of caries stages and interventions on first permanent molars (FPM) in Brazilian children. **Material and Methods:** Data from FPM were extracted from dental records of children aged 5-14 years of age that attended the UERJ Pediatric Dentistry Clinic. Data include patient age, sex, biofilm index, presence of carious lesions in all stages, and the treatments. Data was analyzed using the SPSS® 20.0 program. **Results:** A total of 158 dental records were analyzed, 587 registers were related to the caries stage and 601 related to the interventions; mean age of 8.26 (\pm 1.4 years) and 53.2% were girls. The prevalence of active/inactive white spot (AWS/IWS) varied from 14.3% to 21.6% in right upper and lower left FPM, respectively. Enamel/dentin lesions without pulp involvement were also more prevalent in the lower arch and ranged from 3.4% for the right upper to 11.5% for the lower right FPM. Cavities with pulp involvement or indicated extraction ranged from 0% to 1.4%. Treatment included dental sealants, varying from 17.1 to 24.0% (n=126) and restorations, varying from 1.3 to 11.8% (n=38). The lower right were the most affected teeth. **Conclusion:** First permanent molars presented a higher prevalence of dental caries in early stages and the most prevalent treatment was related to the initial carious process, fluor therapy and sealants.

Keywords: Children; Dentition, Permanent; Dental Caries; Dental Care.



Association of Support to Oral Health Research - APESB