

Кухта В.С., Микиєвич Н.О.

# Оцінка крихкості руйнування реставраційних матеріалів світлової полімеризації за аналізом сигналів, отриманих методом акустичної емісії

Львівський національний медичний університет ім. Данила Галицького, м. Львів, Україна

**Актуальність.** Велика кількість матеріалів світлової полімеризації, що використовуються в стоматології для відновлення як передніх, так і кутніх зубів, завдяки їх естетичним і механічним властивостям, визначають актуальність і доцільність їх порівняльних досліджень. Будь-який реставраційний стоматологічний матеріал, як і природні зуби, повинен мати достатню механічну цілісність, щоб функціонувати у порожнині рота протягом тривалого часу. Зважаючи на це, вивчення механічних властивостей цих матеріалів є надзвичайно важливим клінічним завданням.

**Мета.** Визначення міцнісних характеристик та особливостей руйнівних процесів композитних матеріалів світлового твердіння за їх триточкового навантаження із застосуванням явища акустичної емісії (АЕ).

**Матеріали і методи.** Із композитних пломбувальних матеріалів Latelux, TetricN-Ceram, Charisma Classic, Filtek Z250, виготовляли зразки, які навантажували до повного їх руйнування на установці СВР-5. Сигнали у процесі зародження та розвитку руйнування записували портативною восьмиканальною вимірювальною системою SKOP-8M, визначали міцність на згин, модуль пружності, а також досліджували динаміку руйнування матеріалів методом акустичної емісії.

**Результати.** Визначено, що характер руйнування матеріалів Latelux, Tetric N-Ceram і Charisma Classic пружно-пластичний на початковому етапі навантаження з переходом до крихкого при його подальшому зростанні. Натомість руйнування матеріалу Filtek Z250 є крихким.

**Висновок.** Встановлено, що під час навантаження найбільшу амплітуду та енергію мали сигнали, що супроводжували руйнування композиту Tetric N-Ceram, найменшу – Latelux. Найвищу стійкість до руйнування показав наногібридний композит Tetric N-Ceram.

**Ключові слова:** композитні матеріали, міцність, пружність, навантаження, руйнування, акустична емісія.

Серед значної кількості матеріалів, які використовуються для реставрації зубів, композиційні пломбувальні матеріали займають провідне місце. Вони найкраще відповідають основним принципам біоміметики у стоматології: мають збалансовану яскравість, напівпрозорість і зносостійкість [13]. Асортимент композитних матеріалів, представлених на стоматологічному ринку, дуже широкий: макронаповнені, мікронаповнені, гібридні, текучі, наноккомпозити, ормокери та інші [5]. При виборі того чи іншого матеріалу важливо знати його поведінку під час експлуатації реставрації, а саме зародження та поширення руйнування під дією згинальних навантажень.

На сьогодні найефективнішим методом для вивчення процесів і стадій розвитку дефектів структури реставраційних матеріалів світлової полімеризації є метод акустичної емісії, який ґрунтується на реєстрації пружних хвиль, що виникають унаслідок

формування, зміни та руйнування структури різних матеріалів [11]. Перевагами методу є можливість отримання інформації про руйнування уже на ранніх стадіях, а його висока чутливість дає змогу виявляти навіть невеликі дефекти.

Метод АЕ зазвичай використовували для вивчення стійкості до руйнування різних композитних матеріалів [3], дослідження інтерфейсу зуб/композит [2,8,12], аналізу полімеризаційних напружень та ступеня усадки [4,7,9].

Отже, як свідчить аналіз інформаційних джерел, метод АЕ слугує ефективним інструментом для моніторингу в реальному часі стадій руйнування композитних матеріалів.

На сьогодні нам невідомі публікації, присвячені вивченню зародження та поширення руйнування в композитних матеріалах під дією згинальних навантажень.

*Мета дослідження* – визначення міцнісних характеристик та особливостей руйнівних процесів композитних матеріалів світлового твердіння за їх триточкового навантаження із застосуванням явища акустичної емісії.

### Матеріали та методи

Для порівняльних досліджень обрані композитні пломбувальні матеріали для реставрації зубів: Latelux (Latus, Україна; полімерна матриця: BisGMA, UDMA, TEGDMA; частки неорганічного наповнювача (0.02-3  $\mu\text{m}$ )); Tetric N-Ceram (Ivoclar Vivadent, Ліхтенштейн; полімерна матриця: BisGMA, UDMA, TEGDMA; наповнювач: Ba glass, Ba-Al-F-Si glass, YbF<sub>3</sub>, SiO<sub>2</sub>, MO (0.04-3  $\mu\text{m}$ )); Charisma Classic (Kulzer, Німеччина; полімерна матриця: BisGMA, TEGDMA; наповнювач: Ba-Al-Fe glass, SiO<sub>2</sub>(0.01-2  $\mu\text{m}$ )); Filtek Z250 (3M ESPE, США; полімерна матриця: BisGMA, BisEMA, UDMA; наповнювач: ZrO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> (0.01-3.5  $\mu\text{m}$ )).

Для випробувань за темою дослідження використовували згідно з міжнародним стандартом ISO 4049 [6] балкоподібні зразки довжиною, шириною та висотою 25 мм, 2 мм та 2 мм, відповідно. Пакування і формування матеріалу у форму проводили в лабораторних умовах за температури повітря 18...21 С.

У комірці форми для виготовлення зразків малими порціями вносили відповідний композитний матеріал світлового твердіння з подальшою конденсацією до дна та стінок комірки за допомогою стоматологічного штопфера для композитів (тип Ladmore, TNBBL2, виробник: Nu-Friedy).

Далі проводили полімеризацію відповідного матеріалу за допомогою ультрафіолетового опромінення з довжиною хвилі 420...480 нм з інтенсивністю світлового потоку 2,0...2,2 мВ/см<sup>2</sup> (TURBO Program), використовуючи світлодіодну безпроводну фотополімерну лампу Bluephase 20i (G2) (Ivoclar Vivadent).

Після полімеризації матеріалу в усіх комірках зразки виймали з форми і протягом 20 секунд освітлювали кожну з поверхонь ще раз.

Зразки обережно шліфували абразивним папером (абразивність 320 грит). Полірування зразків здійснювали до появи сухого блиску поверхні, після чого кожен із них оглядали візуально з метою виявлення можливих дефектів у товщі, дефектів полімеризації і структури, що могло призвести до хибних результатів під час проведення випробувань [6]. Перед випробуваннями зразки витримували протягом 24-х годин за температури 37<sup>0</sup> С у фізіологічному розчині.

Експериментальні випробування зразків на міцність проводили на установці СВР-5, розробленій у фізико-механічному інституті ім. Г.В. Карпенка НАН України.

Зразки навантажували до повного руйнування на установці СВР-5 зі швидкістю переміщення траверси 0,5 мм/хв.

Сигнали АЕ, що супроводжували процеси зародження та розвитку руйнування, записували портативною восьмиканальною вимірювальною системою SKOP-8M. Система забезпечує виділення, реєстрацію та попередню обробку сигналів АЕ з подальшим збереженням їх в пам'яті персонального комп'ютера. Система здійснює реєстрацію сигналу АЕ через вісім незалежних інформаційних сигнальних каналів і в момент приходу сигналу, амплітуда якого перевищує встановлений пороговий рівень шумів, через будь-який з восьми каналів, починається запис сигналів АЕ у цифровому форматі на всіх каналах із часовою прив'язкою кожного. Режими вимірювань: тривалість вибірки 0,25 мс; період дискретизації аналогового сигналу 0,5 мкс; частота зрізу фільтра низьких частот 600 кГц, високих – 75 кГц; поріг дискримінації – у межах 30%.

Міцність на згин обчислювали за формулою:

$$\sigma_f = 3Fl/2bh^2, (1)$$

де:  $\sigma$  – міцність на згин (МПа); F – навантаження руйнування (Н); L – відстань між опорами (мм); h – висота зразка (мм); b – ширина зразка (мм).

Для обчислення модуля пружності E (МПа) використовували формулу:

$$E = 3Fl^3/2bh^3D, (2)$$

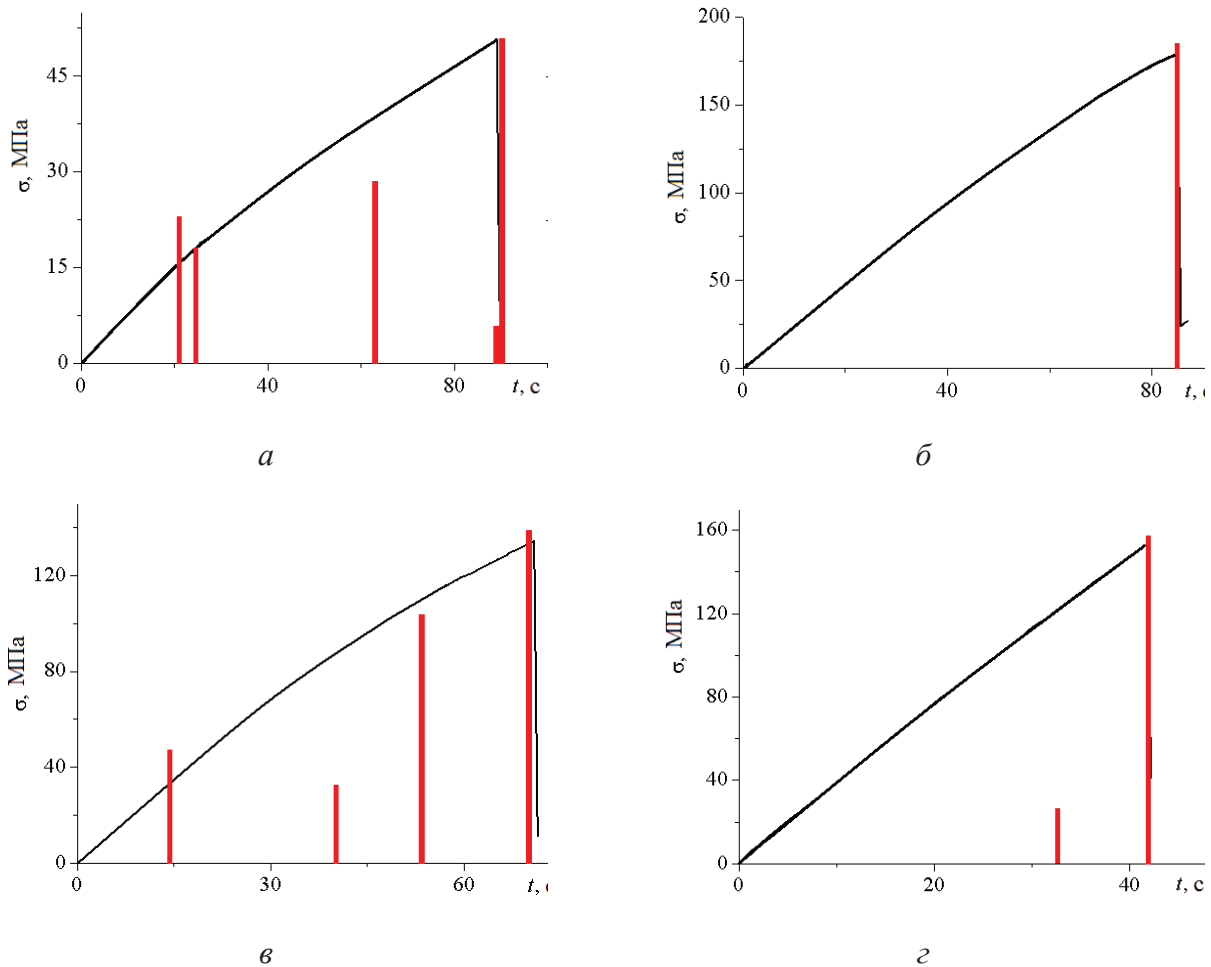
де: F – навантаження руйнування (Н); L – відстань між опорами (20 мм); h – висота зразка (мм); b – ширина зразка (2 мм); D – деформація зразка при значенні F.

Для оцінки сигналів АЕ під час руйнування композитних матеріалів використано метод, запропонований у [10, 11], який передбачає аналіз енергії  $E_{WT}$  локальних максимумів безперервного вейвлет-перетворення (НВП) сигналів АЕ, що характеризують кожен акт зламу.

Результати статистично аналізували за допомогою пакету ANOVA. Для виявлення статистично однорідних підмножин використали порівняльний критерій Тьюкі ( $p = 0,05$ ).

### Результати дослідження та їх обговорення

На рис. 1 відображені типові залежності зміни навантаження та розподіл амплітуд сигналів АЕ від часу. Визначено, що під час навантаження зразків рестав-



**Рис. 1. Типові залежності зміни напружень із розподілом амплітуд сигналів АЕ від часу (1 ум. од. = 1000 мкВ): а – Latelux; б – Tetric N-Ceram; в – Charisma Classic; г – Filtek Z250.**

раційних полімерів руйнування у різних матеріалах протікає по-різному. Найбільшу АЕ-активність спостерігали у мікрогібридних композитах Latelux (рис. 1, а) та Charisma Classic (рис. 1, в), що свідчить про зародження руйнування в них уже на ранніх етапах навантаження.

Незначну АЕ-активність продемонстрував також мікрогібридний композит Filtek Z250 (рис.1, г). А от у наногібридному композиті Tetric N-Ceram сигнали АЕ згенерувались аж за досягнення навантаження руйнування, що свідчить про його високу структурну однорідність та стійкість до руйнування (рис.1, б).

Визначено, що час до повного руйнування зраз-

ків також відрізняється. Зокрема, середній час до повного руйнування Tetric N-Ceram з найбільшою міцністю та Latelux з найменшою відрізняється несуттєво і складає  $85 \pm 15$  с. Для інших композитних матеріалів він складає: Charisma Classic –  $75 \pm 12$  с, Filtek Z250 –  $42 \pm 10$  с.

Міцність на згин та модуль пружності матеріалів представлено в таб. 1.

Міцність на згин композиту Latelux статистично суттєво відрізняється від інших матеріалів ( $p < 0,01$ ). Водночас між навантаженням руйнування композитів Tetric N-Ceram і Charisma Classic ( $p > 0,2$ ), Charisma Classic і Filtek Z250 ( $p > 0,09$ ), Tetric N-Ceram і

*Таблиця 1*

**Значення та стандартні відхилення (ств) міцності на згин і модуля пружності реставраційних композитів.**

Матеріал	В, МПа знач. ( $\pm$ ств)	Е, ГПа знач. ( $\pm$ ств)
Latelux	60,75 ( $\pm 9,24$ )	19,80 ( $\pm 5,26$ )
Tetric N-Ceram	164,44 ( $\pm 20,42$ )	57,59 ( $\pm 2,88$ )
Charisma Classic	141,19 ( $\pm 9,81$ )	60,10 ( $\pm 17,19$ )
Filtek Z 250	129,38 ( $\pm 33,94$ )	107,46 ( $\pm 2,95$ )

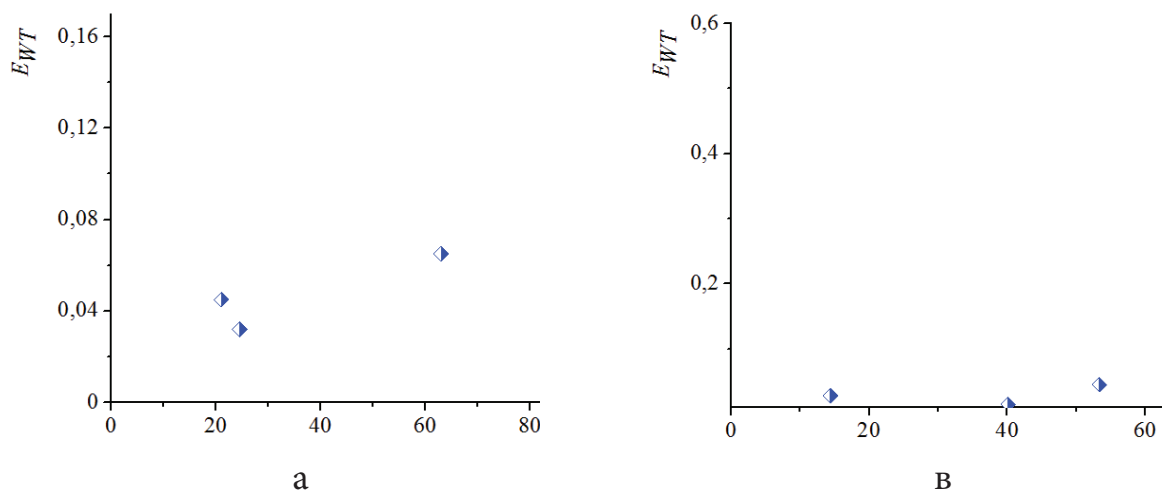


Рис. 2. Типові розподіли у часі сигналів АЕ за енергетичним параметром під час триточкового згину зразків із реставраційних композитів: а – Latelux; б – Tetric N-Ceram.

Filtek Z250 ( $p > 0,8$ ) ця різниця несуттєва.

Міцність на згин композиту Filtek Z250 статистично суттєво відрізняється від матеріалу Latelux ( $p < 0,01$ ) та Charisma Classic і Tetric N-Ceram ( $p < 0,05$ ). Водночас між модулем пружності Latelux і Tetric N-Ceram ( $p > 0,1$ ), Latelux і Charisma Classic ( $p > 0,5$ ), Tetric N-Ceram і Charisma Classic ( $p > 0,7$ ).

Для вивчення динаміки руйнування стоматологічних композитів сигнали АЕ, які реєстрували під час експериментів, аналізували за енергетичним параметром  $E_{WT}$ . На рис. 2 зображено типові розподіли у часі

сигналів АЕ за енергетичним параметром для мікрогібридних композитів Latelux та Charisma Classic. Визначено, що упродовж зростання навантаження переважно генеруються сигнали АЕ внаслідок поширення мікротріщин, а з наближенням до його максимального значення відбувається різкий стрибок – макротріщини, що врешті спричиняє поділ зразка на дві частини.

Діапазон значень критеріального параметра для стоматологічних композитів наведено у таблиці 2.

Зауважимо, що під час поширення мікротріщин у полімері Charisma Classic генерувались сигнали АЕ

Таблиця 2

Діапазон значень критеріального параметра  $E_{WT}$  для стоматологічних композитів.

Назва пластмаси	Тип руйнування	
	Поширення мікротріщин	Поширення макротріщини
Latelux	$0,012 \leq E_{WT} \leq 0,045$	$0,1 \leq E_{WT} \leq 0,18$
Tetric N-Ceram	–	$0,1 \leq E_{WT} \leq 1,5$
Charisma Classic	$0,015 \leq E_{WT} \leq 0,065$	$0,1 \leq E_{WT} \leq 0,6$
Filtek Z 250	$0,011 \leq E_{WT} \leq 0,052$	$0,1 \leq E_{WT} \leq 2,0$

більшої енергії, а відтак і амплітуди, ніж у матеріалах Latelux та Filtek Z250 (рис.3). Відомо, що амплітуда сигналу АЕ прямо пропорційна площі новоутвореної поверхні руйнування. Отже, під дією навантаження у композиті Charisma Classic утворювались мікротріщини дещо більшого розміру, ніж в інших матеріалах. Поширення макротріщини у матеріалі Filtek Z250 супроводжувалось сигналами АЕ найбільшої енергії, що підтверджує його більшу крихкість.

Особливістю сигналів АЕ, які генерувались під час руйнування мікрогібридного композиту Filtek Z250, є домінування локальних максимумів НВП нижчого частотного діапазону (рис. 4).

Враховуючи механічні параметри цього матеріалу та результати АЕ-аналізу, серед досліджених композитів Filtek Z250 є найкрихкіший, що важливо враховувати під час вибору відповідного матеріалу для реставрації зубів.

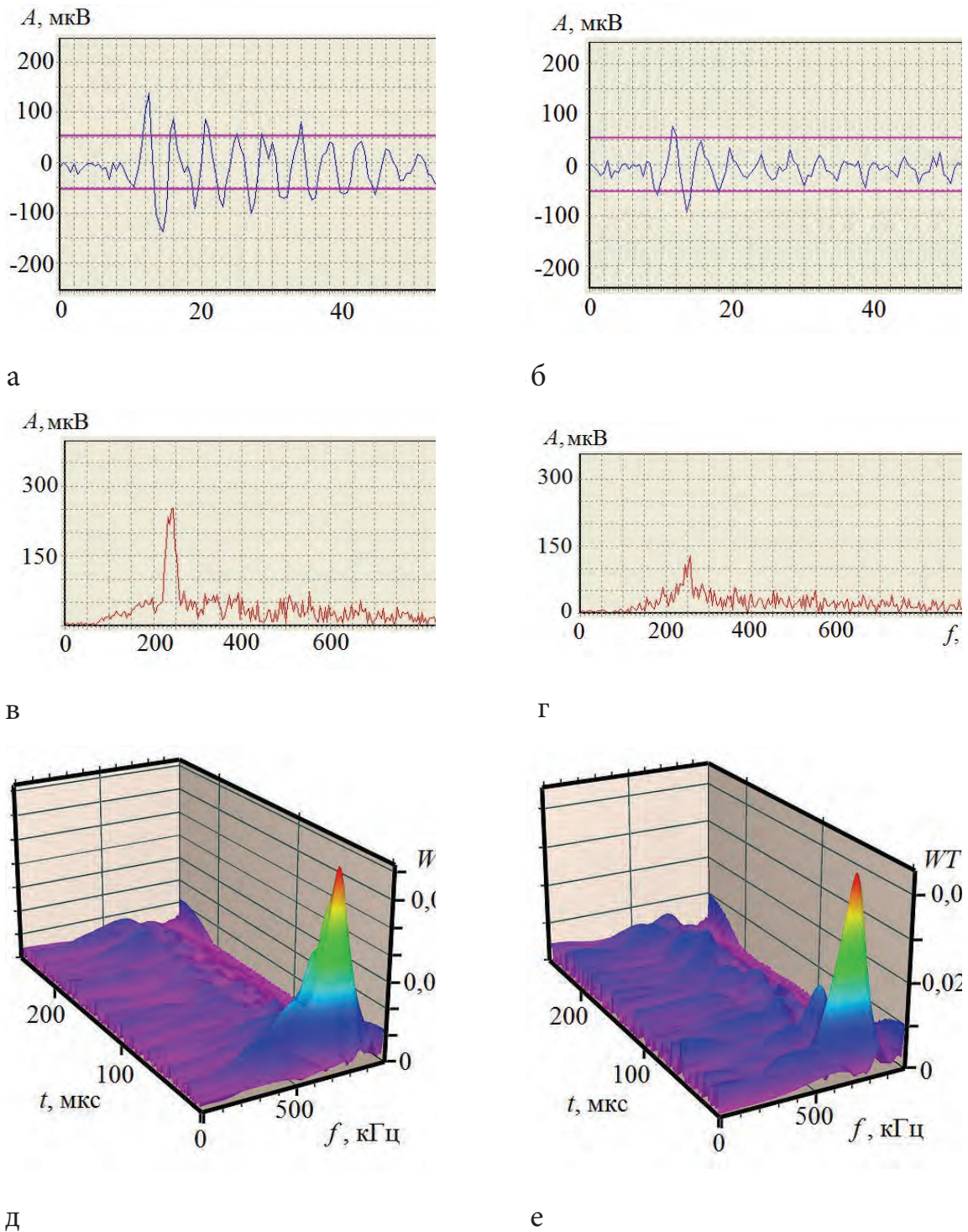


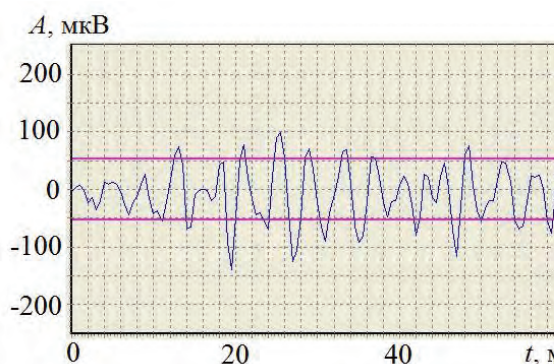
Рис. 3. Хвильове відображення (а, б), спектральний розподіл (в, г) та НВП (д, е) типових сигналів АЕ, які генерувались під час поширення мікротріщин у матеріалах: Latelux (а, в, д) та Charisma Classic (б, г, е).

Отже, за спектральним аналізом сигналів АЕ встановлено, що утворення мікротріщин у полімерах супроводжували сигнали АЕ з частотним діапазоном – 220...260 кГц, утворення макротріщин – 120...150 кГц.

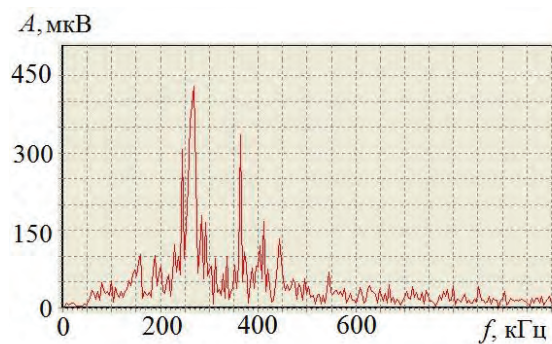
За значенням модуля пружності матеріали розташувались у такому порядку: Filtek Z250 (107,46 ГПа) > Charisma Classic (60,10 ГПа) > Tetric N-Ceram (57,59 ГПа) > Latelux (19,80 ГПа).

За міцністю на згин стоматологічні композити розташувались у такій послідовності: Tetric N-Ceram (164,44 МПа) > Charisma Classic (141,19 МПа) > Filtek Z250 (129,38 МПа) > Latelux (60,75 МПа).

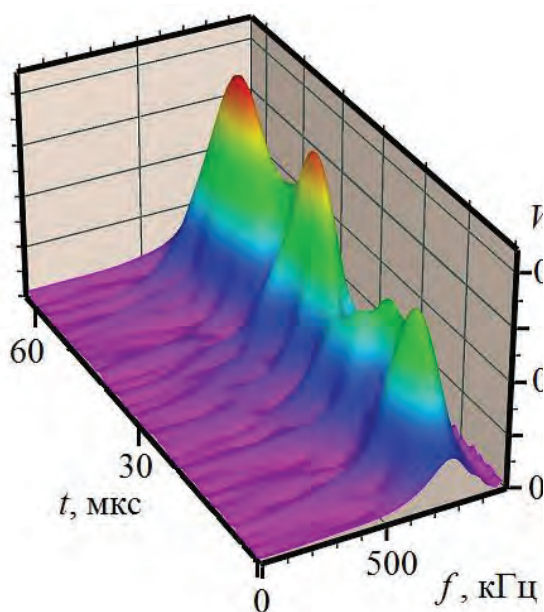
Характер руйнування матеріалів Latelux, Tetric N-Ceram і Charisma Classic пружно-пластичний на початковому етапі навантаження з переходом до крихкого при його подальшому зростанні. Натомість



а



б



в

**Рис. 4.** Хвильове відображення (а), спектральний розподіл (б) та НВП (в) типових сигналів АЕ, які генерувались на початкових етапах руйнування Filtek Z250.

руйнування матеріалу Filtek Z250 є крихким. Отже, Filtek Z250 доцільно використовувати для реставрації зубів, які піддаються найменшим жувальним навантаженням.

Отримані результати узгоджуються з відомими в літературі [1]. За параметрами міцності на згин і модулем пружності досліджувані матеріали відповідають сучасним вимогам до міцності гібридних матеріалів, а найкращі показники має композит Tetric

N-Ceram. Його можна рекомендувати для реставрації зубів, які піддаються найбільшим жувальним навантаженням.

### Висновки

Аналіз параметрів сигналів АЕ показав, що під дією навантаження згину у композитних матеріалах відбувається поширення мікро- та макротріщин. Сигнали, які супроводжували утворення мікротріщин, мали найбільшу амплітуду та енергію в композиті Charisma Classic, найменшу – Latelux, що свідчить про утворення в композиті Charisma Classic мікротріщини дещо більшого розміру, ніж в інших матеріалах. Найвищу стійкість до руйнування показав наногібридний композит Tetric N-Ceram, у якому мікротріщини поширювались уже з наближенням до межі міцності. Поширення макротріщини у матеріалі Filtek Z250 супроводжувалось сигналами АЕ найбільшої енергії, що підтверджує його більшу крихкість.

### ПОСИЛАННЯ

1. Benetti AR, Peutzfeldt A, Lussi A, Flury S. Resin composites: Modulus of elasticity and marginal quality. *Journal of Dentistry*. 2014; 42: 1185–1192.
2. Cho NY, Ferracane JL, Lee IB. Acoustic emission analysis of tooth-composite interfacial debonding. *Journal of Dental Research*. 2013; 92(1): 76–81.
3. Ereifej NS, Oweis YG, Altarawneh SK. Fracture of fiber-reinforced composites analyzed via acoustic emission. *Dental Materials Journal*. 2015; 34(4): 417–424.
4. Erhardt MCG, Goulart M, Jacques RC, Rodrigues JA, Pfeifer CS. Effect of different composite modulation protocols on the conversion and polymerization stress profile of bulk-filled resin restorations. *Dental Materials*. 2020; 36(7): 829–837.

5. Ilie N, Hickel R. Investigations on mechanical behaviour of dental composites. *Clinical Oral Investigations*. 2009; 13: 427–438.
6. ISO 4049:2019. Dentistry - Polymer-based restorative materials. ISO/TC 106/SC 1 Filling and restorative materials. 05.2019. Version 5.36 p.
7. Kim RJ-Y, Kim Y-J, Choi N-S, Li I-B. Polymerization shrinkage, modulus, and shrinkage stress related to tooth-restoration debonding composites of Dentistry. 430–439.
8. Li H, Li J, Liu X, Fok A. Non-destructive examination of interfacial debonding in dental composite restorations using acoustic emission. *Composites and Their Applications*. InTech, 2012. Ch.7: 147–168.
9. Park J-H, Gu J-U, Choi N-S. Acoustic emission characteristics of methacrylate-based composite and silorane-based composite during dental restoration according to a variety of C-factor. *Journal of Mechanical Science and Technology*. 2017; 31(9): 4067–4072.
10. Skal's'kii VR, Makeev VF, Stankevich OM, Kyrmanov OS, Vynnyts'ka SI, Opanasovich V K. Strength evaluation of stomatologic polymers by wavelet transform of acoustic emission signals. *Strength of materials*. 2015; 47(4): 566–572.
11. Skalskyi V, Nazarchuk Z, Stankevych O. Acoustic emission. *Fracture Detection in Structural Materials*. Springer Cham, 2022.XIII, 218 p.
12. Yang B, Guo J, Huang Q, Heo Y, Fox A, Wang Y. Acoustic properties of interfacial debonding and their relationship with shrinkage stress in Class-I restorations. *Dental Materials*. 2016. 32: 742–748.
13. Yanishen IV, Tkachenko IM, Skrypnikov PM, Hasiuk PA. Wear resistance of dental materials which are used for anterior teeth restorations. *Wiadomosci Lekarskie*. 2020; 73(8): 1677–1681.

### Evaluation of brittleness of restorative materials of light polymerization based on the analysis of signals obtained by acoustic emission method.

*Kukhta V., Mykyievych N.*

**Topicality.** A large number of light polymerization materials used in dentistry for the restoration of both anterior and canine teeth due to their aesthetic and mechanical properties determine the relevance of their comparative studies. Any restorative dental material, similarly to natural teeth, must possess sufficient mechanical durability in order to function in the oral cavity over an extensive period of time. In view of this, investigation of mechanical properties of such materials is the clinical task of paramount importance.

**The objective** of the research is to analyse strength characteristics and features of destructive processes of light-hardening composite materials under three-point pressure with the application of the acoustic emission method (AE).

**Materials and methods.** Samples were made from composite filling materials Latelux, Tetric N-Ceram, Charisma Classic, Filtek Z250, which were afterwards pressed until their complete destruction on the CBP-5 machine. In the process of fracture initiation and development signals were recorded by a portable eight-channel SKOP-8M measuring system. Flexural strength and elastic modulus were determined, in addition to dynamics of material fracture being studied by the acoustic emission method.

**Results.** It has been established that the nature of the destruction of Latelux, Tetric N-Ceram and Charisma Classic materials is elastic and plastic at the initial stage of pressure, with the transition to brittle during its further growth, whereas the destruction of the Filtek Z250 material is brittle.

**Conclusion.** The signals accompanying the destruction of the Tetric N-Ceram composite appear to have the highest amplitude and energy, while those accompanying the destruction of Latelux demonstrate the lowest amplitude and energy. Tetric N-Ceram nanohybrid composite shows the highest resistance to destruction.

**Key words:** composite materials, strength, elasticity, pressure, destruction, acoustic emission.

*Кухта Віктор Степанович – кандидат медичних наук, доцент, зав. кафедрою ортопедичної стоматології ЛНМУ ім. Данила Галицького. Львів, Україна. E-mail: viktor.kukhta@gmail.com.*

*Микиевич Назарій Олександрович – лікар-інтерн ЛНМУ ім. Данила Галицького. Львів, Україна. E-mail: mykyich08@gmail.com*

*Стаття: надійшла до редакції 11.01.2024р. – прийнята до друку 29.01.2024 р.*