

ETIENNE ROMANELLI TERRA

**EFEITOS DA RADIAÇÃO X EM UM COMPÓSITO
ODONTOLÓGICO**

Dissertação apresentada à Faculdade de Odontologia de Piracicaba, da Universidade Estadual de Campinas, para obtenção do Título de Mestre em Radiologia Odontológica.

PIRACICABA

2005

ETIENNE ROMANELLI TERRA

EFEITOS DA RADIAÇÃO X EM UM COMPÓSITO ODONTOLÓGICO

Dissertação apresentada à Faculdade de Odontologia de Piracicaba, da Universidade Estadual de Campinas, para obtenção do Título de Mestre em Radiologia Odontológica.

Orientador: Prof. Dr. Frab Norberto Bóscolo

Banca Examinadora:

Prof. Dr. Frab Norberto Bóscolo

Prof. Dr. Júlio Cezar de Melo Castilho

Profa. Dra. Solange Maria de Almeida

PIRACICABA

2005

Ficha Catalográfica

T275e	<p>Terra, Etienne Romanelli. Efeitos da radiação X em um compósito odontológico. / Etienne Romanelli Terra. -- Piracicaba, SP : [s.n.], 2005.</p> <p>Orientador : Prof. Dr. Frab Norberto Bóscolo. Dissertação (Mestrado) – Universidade Estadual de Campinas, Faculdade de Odontologia de Piracicaba.</p> <p>1. Espectroscopia infravermelho transformada de Fourier. 2. Testes de dureza. 3. Desgaste de restauração dentária. 4. Radiação ionizante. I. Bóscolo, Frab Norberto. II. Universidade Estadual de Campinas. Faculdade de Odontologia de Piracicaba. III. Título. (mg/fop)</p>
-------	---

Palavras-chave em inglês (*Keywords*): Spectroscopy, Fourier transform infrared; Hardness tests; Dental restoration wear; Radiation, Ionizing

Área de concentração: Radiologia Odontológica

Titulação: Mestre em Radiologia Odontológica

Banca examinadora: Prof. Dr. Frab Norberto Bóscolo; Prof^a Dr^a Solange Maria de Almeida; Prof. Dr. Júlio César de Melo Castilho

Data da defesa: 21/02/2005

Ao meu marido, Carlos Eduardo, por todo amor, carinho, incentivo e pela presença constante em todos os momentos da minha vida,

meu eterno amor

À minha mãe, que me incentivou e me acompanhou em todos os momentos para que eu pudesse realizar o sonho de ser mestre,

minha eterna gratidão

AGRADECIMENTOS

Ao Prof. Dr. Frab Norberto Bóscolo, pelo estímulo com palavras de incentivo e carinho, estando sempre pronto a nos ouvir e a nos ensinar e acima de tudo por ter nos adotado como filhos, demonstrando uma grande amizade que nunca será esquecida. Por sua humildade e sabedoria contribuindo para a nossa formação na vida pessoal e profissional. Faço seu este momento tão importante da minha existência, dando a esta conquista um sentido muito maior.

A Profa. Dra. Solange Maria de Almeida, por estar sempre a nossa disposição, e pelo carinho, incentivo e amizade a mim dispensados nos momentos difíceis e nos momentos de decisão do meu futuro profissional.

Ao Prof. Dr. Francisco Haiter Neto pela participação neste passo importante do meu crescimento profissional.

A Profa. Dra. Gláucia Maria Ambrosano, exemplo de uma profissional dedicada e capaz, pelo carinho, atenção e auxílio na elaboração deste trabalho.

Ao Prof. Dr. Lourenço Correr Sobrinho, pelo auxílio nos momentos difíceis, e pela orientação contribuindo com seu conhecimento para a elaboração deste trabalho.

Ao Prof. Dr. Roberto Martins Lourenço pelo incentivo à realização do sonho de fazer Mestrado em Radiologia na FOP-UNICAMP.

Meu eterno agradecimento

A amizade é uma das maiores riquezas. Seja qual for o nível da amizade, desde que seja capaz de enriquecer a nossa vida.

O que realmente vale é saber que não estamos sós e sempre haverá alguém para apertar a mão e aquecer nosso coração com sua presença.

Àqueles que em horas de alegria ou de tristeza, souberam amparar meu riso ou minha lágrima, Flávia, Andréa Pontual, Juliana, Adriana, Fábio, Flávio, Andreia Domingos, Maria Luiza, Karina, Melissa, Mauro, Débora, Ana Silvia, Mariliani, Manzi...

As amigas, Dona Marlene, Eliane, Márcia, Rita, Mônica, BelKis, Luana, Luciane, Adriana, Patrícia, Lina e Daniela, por todo apoio e compreensão fundamentais nos momentos de reflexão e pela amizade constante.

Aos funcionários da Disciplina de Radiologia Antônio, Raquel, Roberta, Giselda, Fernando e Waldeck, pela amizade e disponibilidade em todos os momentos.

À DEUS,

“Que nos deu o dom da vida,
Nos presenteou com a liberdade,
Nos abençoou com a inteligência,
Nos deu a graça de lutarmos para a conquista das nossas realizações
Cabe o louvor e a glória.
A nós só cabe agradecer.”

RUI BARBOSA

“O que quer que você possa fazer,
ou sonhe que o possa,
faça-o;
coragem contém genialidade,
poder e magia.”

Goethe

SUMÁRIO

RESUMO	1
ABSTRACT	3
1 INTRODUÇÃO	4
2 REVISÃO DA LITERATURA	7
3 PROPOSIÇÃO	14
4 MATERIAL E MÉTODOS	15
4.1 DUREZA KNOOP	17
4.2 RUGOSIDADE DE SUPERFÍCIE	18
4.3 RESISTÊNCIA À ABRASÃO	20
4.4 ESPECTROMETRIA DE INFRAVERMELHO	22
5 RESULTADOS	25
6 DISCUSSÃO	31
7 CONCLUSÃO	38
REFERÊNCIAS	39
BIBLIOGRAFIA	41

RESUMO

Como a maioria dos pacientes que se submetem à radioterapia na região de cabeça e pescoço possuem restaurações de compósitos na cavidade bucal, qualquer efeito interativo entre o feixe de radiação ionizante incidente e o material restaurador será clinicamente significativo, se as propriedades do material forem alteradas pela radiação. Desconhecendo-se os efeitos dos raios X, produzidos por um acelerador linear, no compósito odontológico FilteK Z250 (3M), foram realizados estudos para avaliar as possíveis alterações nas propriedades físicas, mecânicas e químicas deste compósito após a irradiação. Foram confeccionados 100 corpos-de-prova e mantidos armazenados durante todo o experimento a 37°C e 100% de umidade relativa do ar. O grupo 0 não irradiado foi composto por vinte corpos-de-prova, enquanto os demais corpos-de-prova foram aleatoriamente divididos em quatro grupos, conforme as doses de radiação X recebidas: 1, 2, 5 e 10Gy. Foram utilizados metade dos corpos-de-prova de cada um dos grupos para a análise de rugosidade de superfície e resistência à abrasão, e os demais, para a análise de dureza Knoop e espectrometria de Infravermelho com Transformações de Fourier. Os dados obtidos foram submetidos à análise de variância para medidas repetidas e teste de Tukey ($\alpha = 0,05$). No período avaliado, houve um aumento estatisticamente significativo na dureza Knoop superficial induzida pela irradiação de 10Gy de raios X, indicando uma polimerização adicional no compósito fotopolimerizado, porém, a resistência à abrasão e a rugosidade superficial do compósito Z250 não foram afetadas pelos raios X, quando o compósito foi irradiado até a dose de 10Gy. Os resultados obtidos por meio dos espectros de infravermelho, mostraram que em todas as doses avaliadas alguns grupos funcionais foram consumidos e novos grupos foram formados quando comparados com a amostra não irradiada. Assim, verificou-se que a irradiação (nas doses de 1, 2, 5 e 10Gy) durante o período avaliado não

promoveu efeitos prejudiciais no compósito Z250, apesar das alterações no seu espectro químico.

ABSTRACT

Since most patients submitted to radiotherapy of the head and neck have composite restorations, any interactive effect between ionizing radiation and restorative material will be clinically significant if the material properties are altered by radiation. Due to the lack of knowledge on the effects of X rays produced by a linear accelerator on the dental composite Filtek Z250 (3M), this study was undertaken to evaluate the possible alterations in the physical, mechanical and chemical properties of this composite after irradiation. One hundred specimens were fabricated and stored at 37°C and 100% relative humidity of air throughout the study. Group 0 was not irradiated and comprised twenty specimens, and the other specimens were randomly divided into four groups, according to the X-ray doses received: 1, 2, 5 and 10Gy. Half of the specimens of each group were used for analysis of surface roughness and abrasion resistance, and the others were submitted to the Knoop hardness test and Fourier Transform Infrared Spectrometry. Data were submitted to analysis of variance for repeated measurements and to the Tukey test ($\alpha = 0.05$). In the study period, there was a statistically significant increase in the surface Knoop hardness induced by irradiation with 10Gy of X rays, indicating additional curing of the light-cured composite, yet the abrasion resistance and surface roughness of the composite Z250 were not affected by the X rays when the composite was irradiated with up to 10Gy. The results obtained by the infrared spectra demonstrated that, for all dosages evaluated, some functional groups are consumed and new groups are formed when compared to the non-irradiated sample. Thus, it was observed that irradiation (doses 1, 2, 5 and 10Gy) during the period evaluated did not yield any harmful effects on the composite Z250, despite the alterations in its chemical spectrum.

1 INTRODUÇÃO

A radioterapia é um tratamento que emprega feixes de radiação ionizantes e tem por finalidade destruir as células tumorais ou impedir que se proliferem, inativando os sistemas vitais da célula até a sua incapacidade de reprodução. A radioterapia é fundamental no tratamento do câncer de cabeça e pescoço. Estima-se que dois terços dos pacientes recebem tratamento com radiações, seja com intenção curativa, remissiva ou paliativa, ou ainda, tratamento exclusivo ou associado à cirurgia e/ou à quimioterapia.

O Gray (Gy) é a unidade que corresponde à dose de radiação absorvida por qualquer material ou tecido vivo, sendo aplicada, por um determinado tempo, num volume de tecido que engloba o tumor, buscando erradicar todas as células tumorais, com o menor dano possível às células normais circunvizinhas.

As fontes de energias utilizadas podem ser obtidas por aparelhos que liberam raios X e elétrons, ou a partir de fontes de isótopos radioativos, como, por exemplo, pastilhas de cobalto-60, as quais geram raios gama. Os equipamentos que produzem raios X e elétrons são chamados de aceleradores lineares.

As principais complicações bucais advindas da radioterapia na região de cabeça e pescoço são: mucosite, xerostomia, perda do paladar, cárie de radiação e osteorradionecrose. Estes fatores são particularmente importantes para os pacientes que se submetem à radioterapia na região de cabeça e pescoço, pois os mesmos podem sobreviver ao câncer, mas sofrerão gravemente de uma ou mais das complicações da irradiação, que resultarão em nutrição insatisfatória e perda de peso, diminuindo a sua qualidade de vida.

Há trinta anos, a exodontia de todos os dentes era indicada antes do início da radioterapia, no entanto, conduzia a uma maior incidência de

ostorradiationecrose. Sendo assim, foi desenvolvido um protocolo e instituída a prevenção e cuidados com a higiene bucal. Indivíduos conscientes da necessidade de colaboração com relação à higiene e que apresentem dentes em ótimo estado de conservação podem ser submetidos à radioterapia tendo a sua dentição preservada. Para prevenir ou controlar a cárie de radiação, todos os pacientes que irão se submeter à radioterapia que envolva a região da cavidade bucal devem se submeter a exames e tratamentos prévios necessários, a fim de diminuir o risco de futuras infecções odontogênicas.

Os compósitos empregados como material restaurador foram introduzidos no mercado odontológico na década de 60, desde então, têm sido desenvolvidos com o intuito de melhorar suas propriedades e conseqüentemente a longevidade das restaurações. Devido às melhorias conseguidas, os compósitos tiveram suas indicações ampliadas, de modo que passaram a ser utilizados também em dentes posteriores. Algumas de suas propriedades são fundamentais na prevenção da recorrência de cáries e na determinação da longevidade das restaurações.

Uma das propriedades que o material restaurador dental deve possuir é a capacidade de resistir ao desgaste. O desgaste mecânico pode ser proveniente da mastigação, do bruxismo e também da escovação com dentífrício. Um outro fator importante na longevidade de uma restauração é o grau de polimerização que pode ser avaliado indiretamente através da análise da dureza. A polimerização insuficiente pode resultar em solubilidade e pobre selamento da restauração, conduzindo inevitavelmente à decomposição do material restaurador e à ocorrência de cáries secundárias. Além disso, o material restaurador deve apresentar a maior lisura superficial possível, pois, as superfícies rugosas podem promover o acúmulo de placa bacteriana, cuja remoção pode se tornar difícil devido à presença de fissuras e sulcos inacessíveis, causando assim inflamação gengival e recorrência de cáries.

Durante a radioterapia na região de cabeça e pescoço, os compósitos juntamente com a cavidade oral são conseqüentemente irradiados. Como a radiação ionizante tem tendência a promover mudanças significantes em materiais metálicos e não metálicos, os efeitos em compósitos restauradores terão grande relevância clínica.

Com base no exposto, neste trabalho o objetivo foi avaliar as alterações no compósito Z250 fotopolimerizado e exposto à radiação X, produzida em um acelerador linear.

2 REVISÃO DA LITERATURA

Kamel & Neri pesquisou em 1979 a ação da radiação gama no quartzo (carga inorgânica) e no ácido acrílico (agente de união) de um compósito odontológico. O quartzo e o ácido acrílico irradiados com 4000Gy de raios gama foram acrescentados à matriz polimérica e os testes de dureza de superfície e resistência à abrasão foram realizados. Comparando o compósito com a carga e o agente de união irradiados e o compósito com carga e agente de união não irradiados, Kamel & Neri concluíram que houve um aumento na dureza de superfície estatisticamente significativa, quando a carga e o agente de união foram irradiados, porém a resistência à abrasão não apresentou alterações estatisticamente significantes.

Burnay, em 1980, estudou a ação da radiação ionizante no compósito diglicidil éter bisfenol A polimerizado quimicamente por meio de diamina etileno. Os corpos-de-prova foram irradiados com doses acima de 5000Gy. A análise dos espectros por meio de um espectrômetro de infravermelho mostrou formação dos grupos carbonil e difenil etileno, nas amostras irradiadas em relação ao controle. A produção dos grupos difenil etileno pôde ser verificada por meio da frequência correspondente ao C=C conjugado com dois radicais fenil e do grupo carbonil, pela frequência relativa ao C=O. Todos os grupos formados aumentavam em quantidade linearmente com o aumento da dose.

Schnabel, em 1981 relatou que, contrariamente à absorção de luz visível, a radiação ionizante não é absorvida especificamente. Os raios X e gama não atuam nos grupos cromofóricos como a luz visível atua. A absorção de energia ionizante ocorre via interação com o núcleo dos átomos e nuvens de elétrons ao redor deles. Quando os raios X e gama interagem com elétrons nos orbitais atômicos ou moleculares três processos são possíveis de ocorrer: efeito fotoelétrico, efeito Compton, e formação de pares. Os polímeros, quando expostos

à radiação de alta energia, sofrem ligação cruzada e quebra da cadeia principal, em decorrência da ação dos radicais livres. Geralmente as propriedades mecânicas dos polímeros que sofreram principalmente ligação cruzada devido à irradiação são melhoradas, por exemplo, a elasticidade, a resistência à tração e a dureza aumentam enquanto a solubilidade diminui com o aumento da dose. Entretanto, quando altas doses são absorvidas, eles tornam-se muito duros e friáveis. Polímeros com constituintes aromáticos são mais estáveis quando irradiados, pois eles são levemente afetados quando comparados com os não aromáticos.

Burnay, em 1982, realizou outro experimento para verificar a ação da radiação ionizante no compósito diglicidil éter bisfenol A quimicamente polimerizado com diamina difenil metano. Os corpos-de-prova foram confeccionados e irradiados com doses acima de 1000Gy. Os resultados da análise no espectrômetro de infravermelho mostraram a produção dos grupos funcionais difenil etileno e carbonil (grupos estáveis) e também de radicais fenil, fenoxil e difenil (grupos instáveis) e diminuição dos grupos O-H, C-O, CH₂, CH₃ e anéis aromáticos nos corpos-de-prova irradiados em relação ao controle não irradiado. Burnay observou que alguns grupos funcionais não aumentavam ou diminuía linearmente com a dose de irradiação. Concluiu que os radicais instáveis formados podem dar origem, depois de um determinado tempo, a mudanças estruturais no material, reagindo com o oxigênio difundido dentro da amostra.

Em 1984 Faria & Chiminazzo Jr observaram em seu estudo que quanto maior a energia da radiação emitida, mais profundamente se dará o máximo de absorção desta radiação (portanto, o máximo dano biológico) e maior será a proteção dos tecidos superficiais (pele e subcutâneo). A energia emitida pelo cobalto-60 é sempre constante e igual a 1,2MeV, ao contrário dos aceleradores lineares que podem produzir diferentes energias sendo encontrados

comercialmente variando de 4MeV até 32MeV no Brasil, proporcionando assim uma proteção significativa aos tecidos normais do paciente.

Em 1985, Yearn avaliou o grau de polimerização em diversas profundidades (1 a 10mm) do compósito experimental AC 3825B (TEGDMA e UDMA) através da dureza Knoop. O experimento foi realizado em dentes humanos extraídos nos quais foram confeccionadas restaurações, e em corpos-de-prova confeccionados com o compósito. O tempo de polimerização foi de 20 segundos. Concluiu-se que em cavidades com mais de 3mm de profundidade é necessário utilizar a técnica incremental para uma polimerização satisfatória. Segundo o autor uma polimerização insuficiente pode resultar em solubilidade e pobre selamento da restauração e ainda conduzir inevitavelmente a decomposição do material restaurador e a ocorrência de cáries secundárias. O ensaio de dureza empregado foi considerado um indicador adequado do grau de conversão ou polimerização de compósitos e método capaz de prever o desempenho clínico do material restaurador.

Em 1986, foi investigada por meio da técnica de Ressonância Paramagnética de Elétrons (RPE), por Langel & Louro a ação da radiação X e gama, induzindo radicais livres no compósito odontológico Adaptic (Bis-GMA, Bis-MA e TEDMA). Os corpos-de-prova do material foram confeccionados e irradiados com raios X (PW 2184 Philips, 50Kv e 10mA) com as seguintes taxas de absorção: 7,5 e 9,0Gy, e outro grupo com raios gama (unidade de terapia Gamatron-S) com as taxas de absorção: 15,5 e 31,6Gy. Os espectros foram obtidos por meio do RPE. Os resultados do estudo mostraram que os raios X e gama produzem radicais livres no compósito, porém os raios gama são sete vezes mais eficientes na produção de radicais livres do que os raios X.

Em 1989 os efeitos da radiação gama nas propriedades mecânicas de três compósitos para restaurações anteriores, dois fotopolimerizáveis (P-50/3M e Silux Plus/3M), um compósito autopolimerizável (Concise/3M) e um compósito

para restaurações posteriores fotopolimerizável (Valux/3M) foram estudados *in vitro*, por Von Fraunhofer *et al.*. Após a preparação, os corpos-de-prova foram armazenados em água destilada $23^{\circ}\text{C} \pm 0,5^{\circ}\text{C}$ por 24 horas. Os corpos-de-prova foram expostos a 2, 5, 10, 20 e 50Gy. Um grupo de cada compósito não foi irradiado permanecendo como controle. Adicionalmente nos materiais fotopolimerizáveis, um volume de pasta necessário à confecção de dois corpos-de-prova foi submetido a uma dose de 80Gy de radiação gama. A dureza de superfície e subsuperfície foram verificadas em todos os materiais da pesquisa. Os resultados mostraram que a dureza de superfície e subsuperfície foram aumentadas nos compósitos fotopolimerizáveis, e esses aumentos eram linearmente relacionados à dose de radiação. Os corpos-de-prova submetidos somente à radiação gama de 80Gy apresentaram uma polimerização parcial, presumindo que o aumento da dureza dos compósitos fotopolimerizáveis foi provavelmente devido a um aumento no grau de polimerização. O compósito autopolimerizável (Concise/3M) não apresentou alterações significantes. Neste estudo, Von Fraunhofer *et al.* (1989) concluíram que não ocorrem efeitos deletérios, decorrentes da irradiação gama, nas propriedades mecânicas dos materiais restauradores estudados, em níveis terapêuticos, sendo que não há necessidade de remover restaurações antes da radioterapia com raios gama.

Os efeitos da radiação gama em três compósitos para restaurações anteriores, dois fotopolimerizáveis (p-50/3M e Silux Plus/3M) e um autopolimerizável (Concise/3M) e um compósito para restaurações posteriores fotopolimerizável (Valux/3M), foram estudados *in vitro* por Curtis Jr *et al.* em 1991. Depois de confeccionados, os corpos-de-prova foram expostos a 1, 5, 10, 20, 50 e 80Gy de radiação gama por uma fonte de cobalto-60. Um grupo de cada material não foi irradiado servindo como controle. As amostras foram submetidas a um grupo de 100, 200, 300, 400 e 500 ciclos em um aparelho abrasivador. A espessura de cada corpo-de-prova foi mensurada em três pontos aleatórios antes e após o ensaio de abrasão. Os resultados deste trabalho indicaram que não há

nenhum efeito nas características de abrasão nos materiais restauradores investigados quando expostos a irradiação gama. Sendo assim, a radiação gama é um improvável causador de efeito danoso na resistência à abrasão de compósitos usados como materiais restauradores, de acordo com os autores.

Segundo March, em 1992, estabelecer o destino exato de todas as moléculas que absorvem luz e de todos os radicais livres formados em uma reação fotoquímica é uma tarefa analítica quase impossível de executar. Um dos motivos para isto é a existência de dez ou quinze produtos em uma reação fotoquímica.

Hsiue & Chang, em 1993, estudaram o efeito da radiação gama na sílica e no metil metacrilato (agente de união) com o objetivo de melhorar as propriedades do compósito restaurador. A carga inorgânica (sílica) e o agente de união após irradiados com 1300, 1700 e 4000Gy foram misturados em quantidades diferentes ao Bis-GMA com TEGDMA, Bis-GMA com trimetil propano trimetacrilato e Bis-GMA com trimetil propano triacrilato esses conjuntos foram posteriormente polimerizados com luz visível. A dureza Knoop foi avaliada e comparada com os mesmos grupos porém contendo a sílica e o agente de união não irradiados (controle). A pesquisa concluiu que quanto maior a quantidade de sílica e de metil metacrilato irradiados maior a dureza Knoop.

Venhoven *et al.* (1993), investigaram a contração de polimerização de compósitos fotopolimerizáveis que apresentavam como base o metacrilato. Neste estudo dezenove tipos de metacrilato foram avaliados por meio de dezoito misturas diferentes. Todas os corpos-de-prova foram fotopolimerizados durante 1 minuto. Um dispositivo conhecido por linômetro foi utilizado para medir a contração de polimerização. A estimativa do grau de conversão foi realizada por meio de uma fórmula matemática utilizando os valores obtidos da contração de polimerização. Venhoven *et al.* observaram que maiores valores de grau de

conversão estão relacionados com maior contração de polimerização e conseqüentemente maior infiltração marginal.

Segundo Reichmanis *et al.*, em 1993, a absorção da radiação de alta energia por um polímero produz excitação e ionização formando íons e radicais livres, sendo que as moléculas excitadas podem sofrer união e/ou cisão induzidas pelos reagentes iniciais. Algumas ligações químicas e grupos são particularmente sensíveis às reações radio-induzidas, como exemplos: o COOH, C-X onde X= halógeno, SO₂, NH₂ e C=C. Por outro lado, existem grupos que são mais resistentes à radiação como os aromáticos. Ainda conforme Reichmanis *et al.*, a especificidade espacial das reações químicas podem resultar da migração intramolecular ou intermolecular de energia. As mudanças moleculares que acontecem em polímeros, como resultado da radiação, induzindo reações químicas, podem ser classificadas como: a) ligação cruzada de cadeia que efetua um aumento no peso molecular e formação de uma rede macroscópica (a solubilidade do polímero diminui com o aumento da dose de radiação); b) cisão de cadeia que efetua uma diminuição dentro do peso molecular e, assim, muda substancialmente algumas propriedades dos materiais poliméricos (diminuição da força elástica e a taxa de dissolução aumenta em um determinado solvente). A radiação ionizante pode produzir mudanças nas propriedades físicas e mecânicas, além de induzir processos de degradação nos polímeros.

Williams & Tlwaites, em 2000, relataram que os equipamentos de cobalto-60 foram por muitos anos utilizados para a radioterapia devido a sua confiabilidade e mínimas exigências de manutenção, apesar da fonte de cobalto-60 necessitar de substituição pelo menos de cinco em cinco anos. Atualmente os aceleradores lineares tornaram-se os equipamentos de escolha na radioterapia, estando disponíveis com uma larga gama de opções, por exemplo, podem ter controle por computador, múltiplos colimadores e ainda apresentam mínima penumbra e feixes simétricos.

O efeito da radiação gama nas propriedades mecânicas do monômero UDMA fotopolimerizável foi investigado por Haque *et al.* (2001), por meio de testes mecânicos e análises dos espectros. A fonte de radiação foi o Cobalto-60 (raios gama). Depois dos corpos-de-prova serem polimerizados, eles foram irradiados com 640Gy e analisou-se dureza de superfície Vickers e resistência à abrasão. Para a realização do teste de resistência à abrasão os corpos-de-prova foram pesados em uma balança eletrônica antes e após o ensaio. O abrasivo usado foi pasta de dente com glicerina. Cada corpo-de-prova foi abrasado por 30 minutos usando uma escova de dente fixada em um aparelho de polimento. Os resultados mostraram que a dureza de Vickers do monômero foi aumentada em aproximadamente 19% devido à radiação gama. Com relação a resistência à abrasão não houve diferença estatisticamente significativa em relação ao grupo controle. As amostras então foram levadas para o Espectrômetro de Infravermelho com Transformações de Fourier. Os resultados dos espectros mostraram diminuição de todos os grupos funcionais na amostra irradiada em relação à amostra não irradiada. A diminuição dos grupos C=C na amostra irradiada sugeriu uma polimerização dos monômeros residuais. Em resumo, os autores concluíram que a irradiação gama aumentou a dureza de superfície do monômero UDMA e que a formação de ligações cruzadas entre as moléculas de carbono induzidas pela radiação poderia ser uma das razões para a melhoria desta propriedade.

Em 2003, Cleland *et al.*, relataram, após uma revisão de literatura, que as propriedades físicas e químicas dos materiais poliméricos podem ser modificadas pelo tratamento com radiações ionizantes (raios X, gama e elétrons). A polimerização, a ligação cruzada e a cisão de cadeia são as reações que podem ser iniciadas pela irradiação. Ambas, ligação cruzada e degradação por meio da cisão de cadeia, ocorrem devido à irradiação, mas uma ou outra pode ser predominante, dependendo da composição do material e da dose de radiação ionizante absorvida pelo material.

3 PROPOSIÇÃO

Com esta pesquisa tem-se o propósito de estudar a ação da radiação x no compósito Filtek Z250 fotopolimerizado nos aspectos:

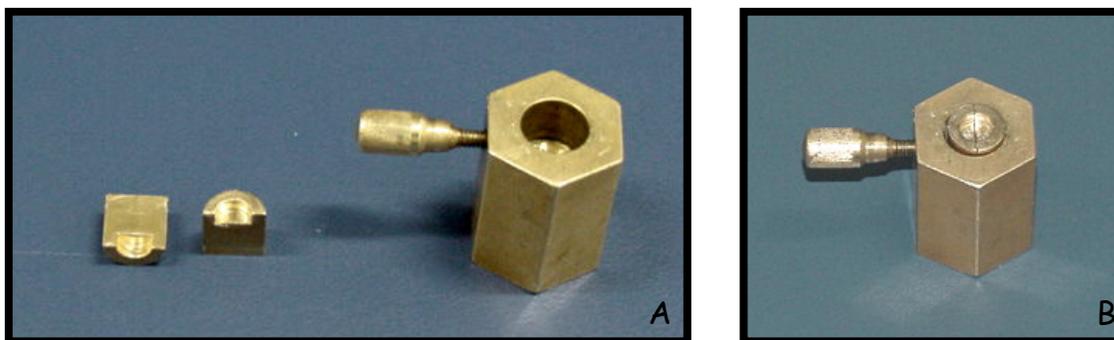
- Avaliar a dureza Knoop, antes e após irradiação com raios X;
- Avaliar a rugosidade de superfície, antes e após irradiação com raios X;
- Avaliar a resistência à abrasão do compósito irradiado com raios X, antes e após a escovação mecânica;
- Analisar o espectro químico, antes e após irradiação com raios X pelo método da Espectrometria de Infravermelho com Transformações de Fourier.

4 MATERIAL E MÉTODOS

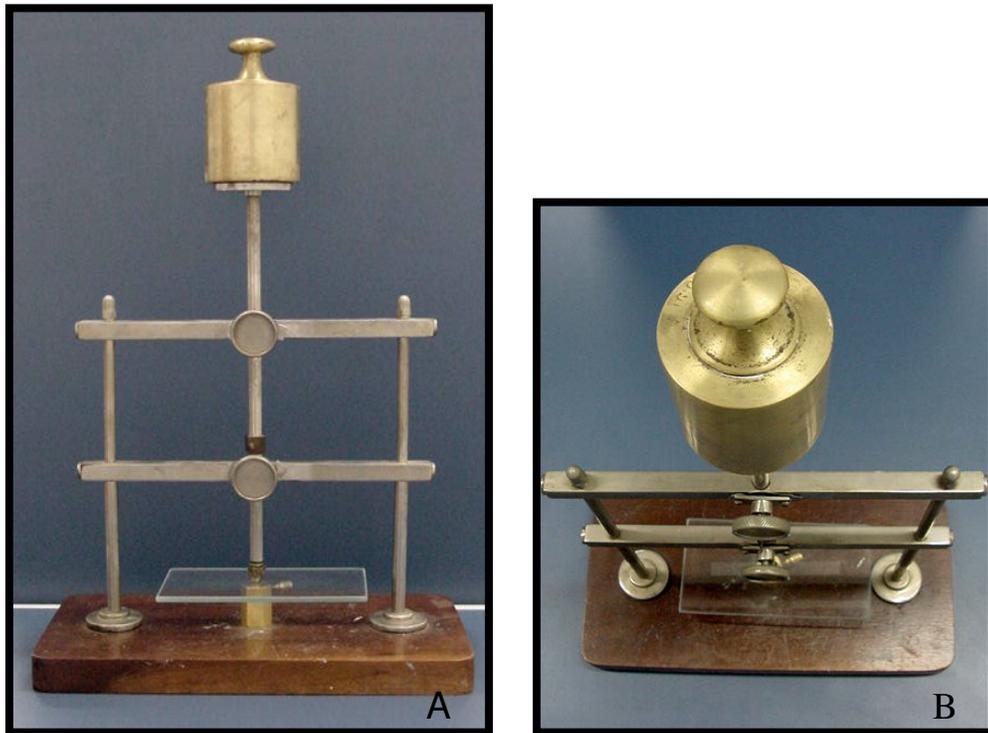
Para o desenvolvimento da pesquisa foram confeccionados 100 corpos-de-prova numa matriz contendo uma cavidade com 5mm de diâmetro por 2,5mm de espessura, no centro de um cilindro de latão, seccionado longitudinalmente na parte central, a fim de facilitar a remoção do corpo-de-prova após a polimerização.

A matriz bipartida foi fixada numa cavidade com 10mm de diâmetro por 9mm de profundidade, confeccionada na parte superior de uma base hexagonal de latão, com 20mm de diâmetro por 25mm de altura. Essa matriz bipartida foi mantida em posição por meio de um parafuso colocado numa das faces laterais da base (Figuras 1A e 1B).

Com o auxílio de uma espátula metálica de inserção nº 1 o compósito Filtek Z250 (3M) cor A2, foi inserido dentro da cavidade, em pequenas porções e com excesso. A adaptação do material foi feita pela compressão de tira de poliéster (Proben) sob uma placa de vidro (47mm x 20mm x 2,5mm), com carga estática de 1kg, necessária para remoção do excesso do material e para deixar a superfície do compósito nivelado às bordas das paredes laterais da matriz (Figuras 2A e 2B).



Figuras 1A e 1B – Matriz de latão para confecção dos corpos-de-prova.



Figuras 2A e 2B – Prensa usada durante a confecção dos corpos-de-prova.

Em seguida, a lâmina de vidro foi removida e os corpos-de-prova foram fotopolimerizados por 20s (conforme a recomendação do fabricante do compósito), utilizando o aparelho fotopolimerizador XL 2500 (3M, Dental Products), com $700\text{mW}/\text{cm}^2$ de intensidade de luz. Após a confecção, os corpos-de-prova foram identificados e acondicionados em suportes de acrílico (Figura 3) em forma de gaveta, contendo quatro gavetas cada. Esses suportes foram mantidos dentro de um recipiente de plástico, onde os corpos-de-prova foram armazenados em água destilada, numa estufa a 37°C , durante toda a pesquisa e por 24h antes das mensurações iniciais.

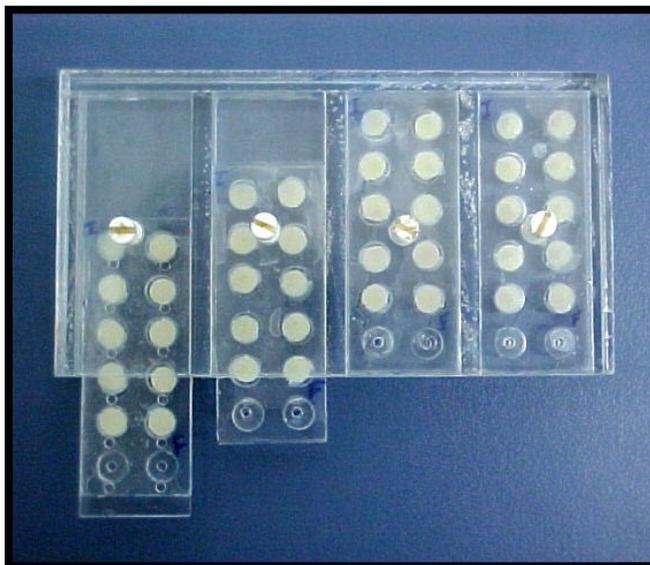


Figura 3 – Suporte de acrílico, com os corpos-de-prova.

O grupo 0, não irradiado, foi composto por vinte corpos-de-prova, enquanto os demais corpos-de-prova foram aleatoriamente divididos em quatro grupos 1, 2, 5 e 10, conforme as doses de radiação X que seriam absorvidas: 1, 2, 5 e 10Gy. Foram utilizados metade dos corpos-de-prova de cada um dos grupos para a análise de rugosidade de superfície e resistência à abrasão, e os demais, para a análise de dureza Knoop e espectrometria de infravermelho com transformações de Fourier.

4.1 DUREZA KNOOP

Para o ensaio de dureza Knoop, os corpos-de-prova foram fixados com cera utilidade numa lâmina para microscopia, de modo que ficassem paralelos tanto à lâmina quanto à base do microdurômetro. Em seguida foram levados individualmente ao aparelho HMV-2000 (Shimadzu, Japão) (Figura 4) que foi

calibrado para uma carga de 50g, atuando por 10s (Hsiue & Chang, 1993). Foram realizadas cinco penetrações, aleatoriamente, na região de superfície de cada corpo-de-prova, totalizando 250 penetrações. Com o auxílio de um microscópio mensurador acoplado ao aparelho, as dimensões das penetrações foram medidas e a dureza Knoop determinada.



Figura 4 – Microdurômetro (HMV-2000)

4.2 RUGOSIDADE DE SUPERFÍCIE

Em seguida, os corpos-de-prova destinados ao ensaio de rugosidade de superfície, foram individualmente adaptados sobre uma placa de vidro com cera utilidade, com o auxílio de uma prensa, com carga de 0,5kgf durante 3s. Os corpos-de-prova foram levados ao rugosímetro Surf Corder (Japão) (ANSI, λ 0,250mm, GAUS, Ln 1.250mm, e velocidade de 0.100mm/s) (Figura 5). A leitura

considerada foi a média aritmética entre picos e vales (RA), percorridos pelo perfilômetro num trecho de medição calibrado para 4,8mm. Em cada corpo-de-prova, foram feitas aleatoriamente três leituras, totalizando 150 leituras.



Figura 5 – Rugosímetro Surf Corder.

Em decorrência do tempo necessário para realização dos testes iniciais, e também devido a disponibilidade do acelerador linear, uma semana após a confecção, os corpos-de-prova foram irradiados com raios X em doses únicas, utilizando um acelerador linear (figura 6), modelo Clinac 2100 (VARIAN) com 6MeV: Grupo 1 – dose total de 1Gy; Grupo 2 – 2Gy; Grupo 5 – 5Gy; e, Grupo 10 – 10Gy. Apenas os corpos-de-prova do grupo 0 não foram irradiados (Grupo controle).

Novamente, 48h depois dos corpos-de-prova terem sido irradiados, eles foram submetidos às leituras da rugosidade de superfície e dureza Knoop, utilizando-se da mesma metodologia empregada anteriormente.

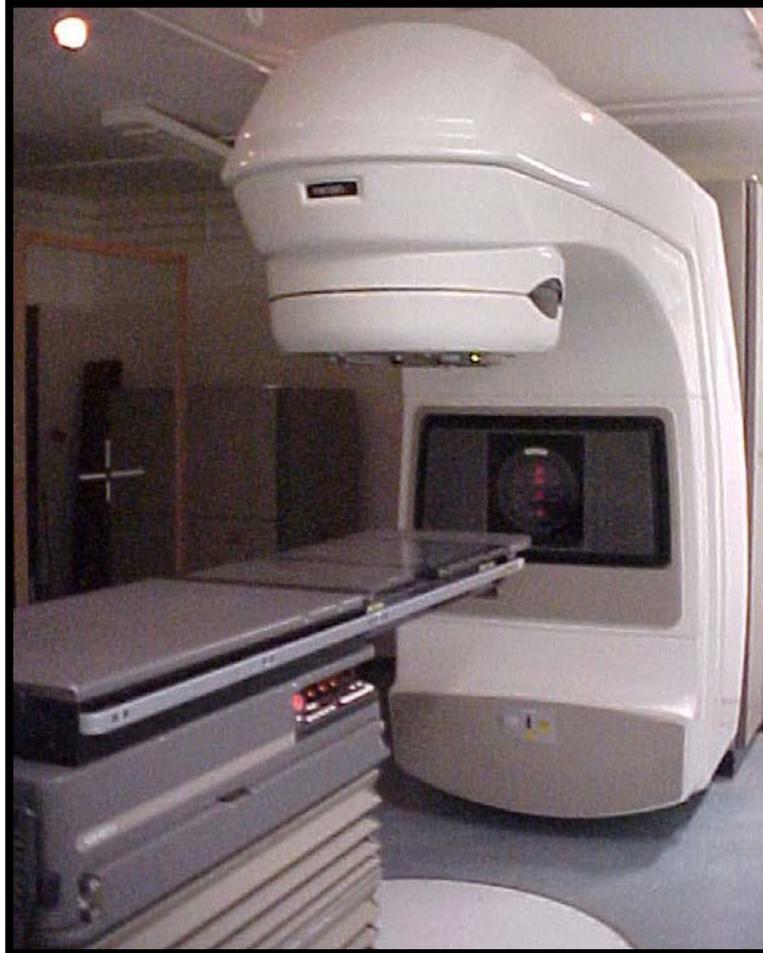


Figura 6 – Acelerador Linear Clinac 2100.

4.3 RESISTÊNCIA À ABRASÃO

Após a segunda verificação da rugosidade de superfície, os corpos-de-prova foram submetidos ao ensaio de escovação, utilizando-se uma máquina de escovação Equilabor (Equilabor, Brasil) (Figura 7), com capacidade para escovação simultânea de oito amostras.

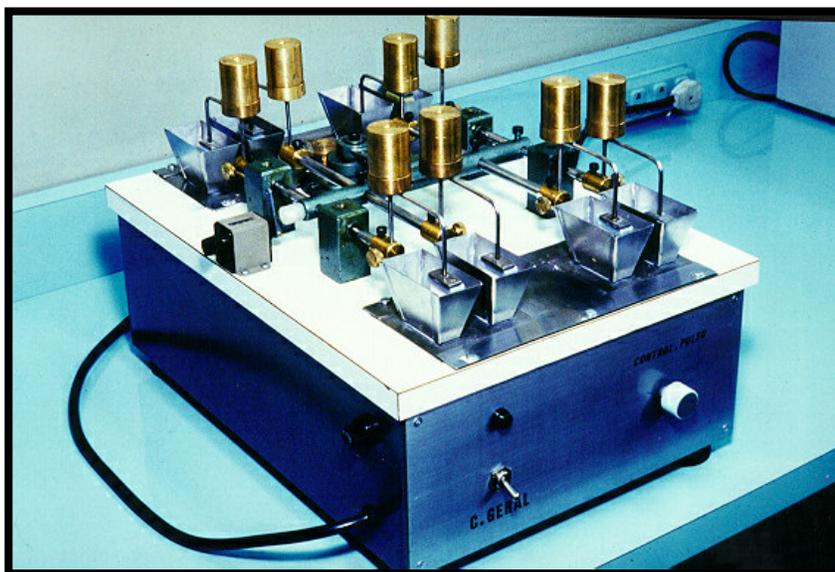


Figura 7 – Máquina de escovação Equilabor

Para a realização deste ensaio foram utilizadas escovas dentais Kolynos Doctor (Kolynos, Brasil), de cerdas macias e hexagonais. O cabo de cada escova foi seccionado, utilizando-se um disco de carboneto de silício (Viking) e a ponta ativa fixada em cada um dos oito dispositivos porta-escova da máquina de escovação, com cola Super-Bonder (Loctite, Brasil), ficando com o longo eixo das cerdas perpendicular à superfície do corpo-de-prova. Os corpos-de-prova foram fixados nas placas de plástico (Tecnil) com cera pegajosa e o conjunto foi fixado no fundo do recipiente metálico de escovação do aparelho. Em seguida, uma proporção de 6g de dentífrico Sorriso (Kolynos, Brasil), aferidos em uma balança de precisão CHYO JK-180, e 6ml de água destilada, mensurados em uma pipeta de precisão de 10ml, foram colocados em cada recipiente metálico. Cada corpo-de-prova foi submetido ao teste de escovação, com movimentos lineares de escovação, com velocidade de 250 movimentos por minuto, totalizando 40.000 ciclos. O percurso de escovação sob o corpo-de-prova foi de 43mm, sob carga estática axial de 200g colocada no suporte do dispositivo porta-escova, para simular a força empregada durante os procedimentos de higiene bucal. A cada

ensaio realizado, a escova dental era trocada, assim como a solução dentifrício /água.

Ao término do ensaio de escovação, cada corpo-de-prova foi removido da máquina, lavado em água corrente e novamente submetido à avaliação da rugosidade superficial.

Previamente e após o ensaio de escovação, os corpos-de-prova foram pesados individualmente em uma balança de precisão CHYO JK-180.

Os dados obtidos foram submetidos à análise de variância para medidas repetidas e ao teste de Tukey ($\alpha = 0,05$).

4.4 ESPECTROMETRIA DE INFRAVERMELHO COM TRANSFORMAÇÕES DE FOURIER

Após o segundo ensaio de dureza Knoop, foi realizado o estudo do espectro químico no qual foram utilizados dois corpos-de-prova de cada grupo: 0; 1; 2; 5; e 10. Os corpos-de-prova foram triturados dois a dois, em um moinho Siemens (Figura 8) para produzir um pó fino.



Figura 8 – Moinho Siemens.

O pó resultante de cada amostra (0; 1; 2; 5; e 10) foi acondicionado em cinco cápsulas distintas (Figura 9) que foram encaminhadas para a análise no laboratório de físico-química do Instituto de Química da UNICAMP, onde se empregou a análise de espectrometria no infravermelho com transformações de Fourier, no aparelho Fourier Transform Infrared Spectrometer Nicolet 520 (Figuras 10A e 10B) *com resolução de 8 e scan de 256*. O intervalo espectral utilizado foi de $4000 - 400\text{cm}^{-1}$.

A espectrometria de infravermelho com transformações de Fourier é um método no qual a luz infravermelha ao passar por uma amostra submete-a a uma faixa larga de energias vibrando suas moléculas, e estas transmitirão variações de intensidade da radiação infravermelha que será captada por um detector, dando origem aos dados do espectro de infravermelho desta amostra, após uma transformação de Fourier (cálculo matemático). Resumidamente, a espectrometria de infravermelho aplicada nos compósitos, permite a observação quantitativa e qualitativa dos grupos funcionais. O comprimento de onda captado pelo detector depende da massa e da geometria dos átomos, e também das forças entre as ligações, ou seja, cada grupo funcional apresenta um comprimento de onda distinto. As vibrações moleculares podem ser classificadas em deformações axiais e angulares. As vibrações de deformação axial são movimentos rítmicos ao longo do eixo de ligação, que fazem com que a distância interatômica aumente e diminua alternadamente. As vibrações de deformação angular correspondem a variações ritmadas, que envolvem alterações dos ângulos de ligação entre os átomos.

Os dados coletados foram transferidos para o programa Microcal Origin 6.0 (Microcal software, Inc, Northamptom, USA) que gerou os gráficos dos espectros e análises de subtração.

Todas as análises foram realizadas num período de vinte e quatro dias.



Figura 9 – Cápsula contendo o pó do compósito Filtek Z250 triturado.

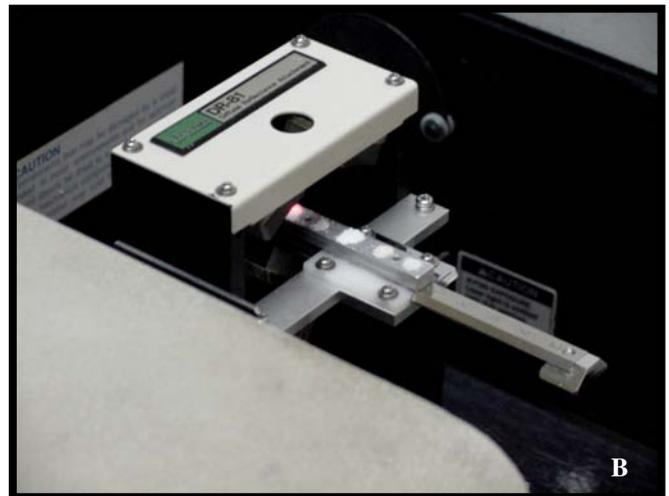


Figura 10A e 10B - Fourier Transform Infrared Spectrometer Nicolet 520

5 RESULTADOS

Os dados resultantes da dureza Knoop, da rugosidade de superfície e da resistência à abrasão foram submetidos à análise de variância para medidas repetidas. A comparação entre os níveis dos fatores foi realizada pelo teste de Tukey, sempre utilizando o nível de significância de 5% ($\alpha = 0,05$).

Tabela 1
Média da dureza Knoop (KHN) dos cinco grupos, antes e após a irradiação.
Os valores do desvio padrão são apresentados entre parênteses.

Grupo	Irradiação	
	Antes	Depois
0 (não irradiado)	58,18 (2,38) a A	59,10 (1,69) b A
1	57,08 (4,41) a B	59,14 (4,08) b A
2	58,48 (2,46) a B	60,59 (3,37) ab A
5	59,47 (2,18) a B	62,85 (2,40) ab A
10	59,65 (4,43) a B	64,87 (3,50) a A

Médias seguidas de letras distintas, minúsculas na coluna e maiúsculas na linha, diferem estatisticamente entre si, ao nível de 5%, pela análise de variância e teste de Tukey.

Na Tabela 1, estão os valores médios da dureza Knoop, para as quatro doses e o grupo controle, antes e depois dos corpos-de-prova serem irradiados. Quando as amostras foram comparadas, antes e após a irradiação, nenhuma diferença estatisticamente significativa foi encontrada para o grupo controle. Por outro lado, os grupos 1, 2, 5 e 10, submetidos à irradiação apresentaram valores de dureza Knoop estatisticamente superiores ($p < 0,05$), quando comparados com as mesmas amostras antes da irradiação. Verifica-se também, que as médias

obtidas nas diferentes doses, antes da irradiação, quando comparadas entre si, não apresentaram diferenças estatísticas significantes ($p > 0,05$). Quando as médias entre as doses, depois da irradiação, foram comparadas entre si verificou-se que os valores são estatisticamente significantes entre o grupo 0 e 1, em relação ao grupo 10 ($p < 0,05$).

Tabela 2

Média dos pesos, em gramas, em relação ao grupo controle, de cada grupo irradiado antes e depois do ensaio de escovação. Os valores do desvio padrão são apresentados entre parênteses.

Grupo	Escovação	
	Antes	Depois
0	0,10808 (0,001283) a A	0,10720 (0,001316) a B
1	0,10841 (0,001902) a A	0,10803 (0,001949) a B
2	0,10884 (0,000866) a A	0,10859 (0,000948) a B
5	0,10879 (0,000828) a A	0,10840 (0,000925) a B
10	0,10887 (0,001596) a A	0,10858 (0,001473) a B

Médias seguidas de letras distintas, minúsculas na coluna e maiúsculas na linha, diferem estatisticamente entre si, ao nível de 5%, pela análise de variância e teste de Tukey.

Na Tabela 2 podemos verificar a média de pesos dos corpos-de-prova mensurados antes e após o ensaio de escovação, dos respectivos grupos: 0, 1, 2, 5 e 10. Observamos que neste ensaio não houve diferença estatisticamente significativa entre os grupos estudados nas diferentes doses aplicadas, quando comparados com o grupo controle, porém houve diferença entre antes e depois da escovação.

Tabela 3

Média da rugosidade, em micrômetros, em relação ao grupo controle e dos grupos irradiados, antes e depois do ensaio de escovação. Os valores do desvio padrão são apresentados entre parênteses.

Grupo	Escovação	
	Antes	Depois
0	0,37 (0,44) a A	0,72 (0,53) a B
1	0,39 (0,26) a A	0,63 (0,35) a B
2	0,16 (0,12) a A	0,73 (0,64) a B
5	0,12 (0,13) a A	1,05 (0,46) a B
10	0,26 (0,30) a A	0,72 (0,88) a B

Médias seguidas de letras distintas, minúsculas na coluna e maiúsculas na linha, diferem estatisticamente entre si, ao nível de 5%, pela análise de variância e teste de Tukey.

Analisando a Tabela 3 verifica-se que não houve diferenças estatisticamente significantes entre os grupos pesquisados, com relação à rugosidade, tanto antes quanto após o ensaio de escovação ($p > 0,05$), porém houve diferenças estatisticamente significantes entre os tempos antes e depois da escovação, quando comparados às médias dos valores em todos os grupos estudados ($p < 0,05$).

Tabela 4

Média da rugosidade, em micrômetros, para cada grupo, antes e depois da irradiação. Os valores do desvio padrão são apresentados entre parênteses.

Grupo	Irradiação	
	Antes	Depois
0	0,33 (0,44) a A	0,37 (0,32) a A
1	0,27 (0,26) a A	0,39 (0,41) a A
2	0,14 (0,12) a A	0,16 (0,19) a A
5	0,16 (0,13) a A	0,12 (0,11) a A
10	0,21 (0,30) a A	0,26 (0,22) a A

Médias seguidas de letras distintas, minúsculas na coluna e maiúsculas na linha, diferem estatisticamente entre si, ao nível de 5%, pela análise de variância e teste de Tukey.

Analisando a Tabela 4 verifica-se que não houve diferenças estatisticamente significantes entre os grupos estudados, tanto antes quanto após a irradiação, e também entre os tempos, antes e depois da irradiação, numa mesma dose ($p > 0,05$).

As amostras do compósito Filtek Z250 foram analisadas via espectro de infravermelho com transformação de Fourier.

O Filtek Z250, segundo o fabricante, é um compósito fotopolimerizável que consiste numa carga inorgânica de zircônio/sílica silanizados, uma mistura de monômeros (bisfenol A polietileno glicol dieter dimetacrilato - bis-EMA, uretano dimetacrilato - UDMA, bisfenol A diglicidil éter dimetacrilato - bis-GMA e trietileno glicol dimetacrilato - TEGDMA) e água.

A atribuição das bandas principais são:

a) 3382cm^{-1} – deformação axial N-H do (UDMA);

- b) 2958cm^{-1} – deformação axial C-H das moléculas orgânicas;
- c) 1994cm^{-1} – frequências de combinação dos anéis aromáticos (bis-EMA e bis-GMA);
- d) 1724cm^{-1} – deformação axial C=O proveniente dos grupos metacrilato;
- e) 1627cm^{-1} – deformação axial C=C dos monômeros;
- f) 1608 , 1581 e 1511cm^{-1} – deformações axiais das ligações C-C dos monômeros;
- g) 1454cm^{-1} – deformação angular dos grupos C-H dos componentes da mistura;
- h) 1280cm^{-1} – deformação axial C-O-C de éteres (bis-EMA e bis-GMA);
- i) 1118cm^{-1} – deformação axial C-OH (bis-GMA);
- j) 1049cm^{-1} – deformação axial Si-O proveniente da sílica;
- h) região abaixo de 1000cm^{-1} – deformações das frações inorgânicas (zircônio e sílica).

Nos espectros obtidos por meio da subtração do espectro das amostras irradiadas pelo espectro da amostra não irradiada (controle) (Figura 12), verificou-se que:

As bandas em 3382 , 2958 e 1994cm^{-1} apresentam seus respectivos grupos funcionais em quantidades próximas ao do controle, em todos os grupos (1, 2, 5 e 10). Em 1724cm^{-1} há uma diminuição do grupo funcional C=O nos grupos 1 e 10, e os grupos 2 e 5 apresentam-se próximos ao controle. Nas bandas 1627 e 1608cm^{-1} , verificamos que há um aumento dos respectivos grupos funcionais C=C e C-C quando o compósito foi irradiado com 5Gy, nos demais grupos irradiados não há grandes diferenças em relação ao controle. A banda em 1581cm^{-1} mostra um aumento de C-C nos grupos 5 e 10, sendo que os grupos 1 e 2 apresentam este grupo funcional em quantidades próximas ao grupo não irradiado. Em 1511cm^{-1} existe uma diminuição do grupo funcional C-C no grupo 1, os grupos 2 e 10 permanecem com os espectros próximos ao controle, e no

grupo 5, observa-se aumento de C-C. A banda em 1454cm^{-1} apresenta um aumento do grupo funcional C-H no grupo 5, os grupos 2 e 10 permanecem próximos ao controle e há uma diminuição deste grupo funcional quando o compósito foi irradiado com 1Gy. A banda em 1280cm^{-1} sofreu uma redução acentuada (grupo C-O-C) em todos os grupos 1, 2, 5 e 10.

A região abaixo de 1118cm^{-1} tem a intensidade de suas bandas diminuída em todos os grupos (1, 2, 5 e 10), sugerindo alterações na estrutura cristalina de seus componentes inorgânicos, sílica e zircônio. Observou-se que o grupo 2 apresenta menor número de alterações em relação ao controle nessa região.

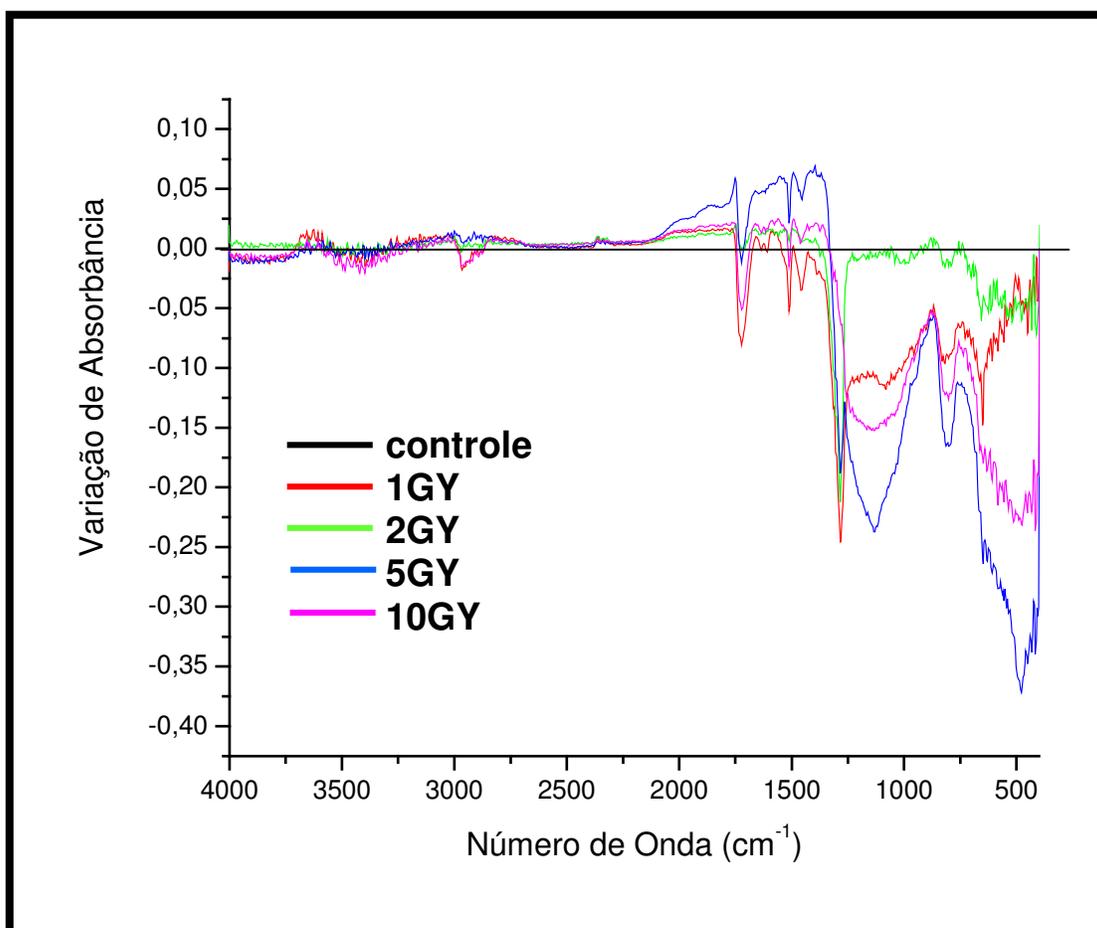


Figura 12 – Subtração do espectro da amostra do compósito Filtek Z250 irradiado com 1, 2, 5 e 10Gy pelo espectro da amostra não irradiada.

6 DISCUSSÃO

Os compósitos fotopolimerizáveis têm a sua polimerização iniciada a partir de um feixe de luz com comprimento de onda de aproximadamente 470nm. A radiação X tem um comprimento de onda que pode variar de 0,01 a 0,05nm e, portanto, tem uma energia cuja intensidade e poder de penetração são maiores do que as da luz visível. Para que ocorra fotopolimerização, a luz visível atua especificamente nos grupos cromofóricos (fotoiniciador) que, no caso do compósito Filtek Z250, é a canforoquinona. Ao contrário da absorção da luz visível, a radiação ionizante não é absorvida especificamente. A absorção de energia ionizante ocorre via interação com o núcleo dos átomos e nuvens de elétrons ao redor deles. Quando os raios X e gama interagem com elétrons nos orbitais atômicos ou moleculares, três processos são possíveis de ocorrer: efeito fotoelétrico, efeito Compton, e formação de pares onde há a produção de excitação e ionização (Schnabel, 1981).

No caso de um polímero como o Filtek Z250, a absorção da radiação de alta-energia produz excitação e ionização, formando espécies excitadas e ionizadas que são os reagentes químicos iniciais. Isto ocorre em decorrência de um processo de rearranjo da cadeia polimérica que é quebrada pela ação da radiação. Os íons formados vão interagir com moléculas produzindo radicais livres (Langel & Louro, 1986). O radical livre é um átomo ou molécula que apresenta um orbital tendo um elétron não emparelhado, o que o torna altamente reativo. Os radicais livres podem induzir reações químicas que alteram principalmente as propriedades mecânicas e físicas do polímero (Reichmanis *et al.*, 1993)

Von Fraunhofer *et al.*, em 1989, pesquisando três compósitos fotopolimerizáveis (P-50/3M, Silux Plus/3M e Valux/3M), observaram um aumento na dureza de superfície, linearmente à dosagem de radiação gama, e somente as doses acima de 10Gy apresentaram aumento estatisticamente significativa na

dureza, sendo que as doses utilizadas para a pesquisa foram 2, 5, 10, 20 e 50Gy. Também neste presente estudo, os corpos-de-prova que foram irradiados com 10Gy apresentaram diferença estatisticamente significativa, em relação ao grupo controle e ao grupo irradiado com 1Gy, assemelhando-se os nossos resultados aos do autor supra citado. Haque *et al.*, em 2001, analisando o efeito de 640Gy de radiação gama sobre o uretano dimetacrilato (UDMA) fotopolimerizado, notaram um aumento de 19% na dureza de superfície Vickers. Neste nosso estudo, houve um aumento estatisticamente significativo da dureza de superfície (aproximadamente 8,7%) do compósito Filtek Z250 fotopolimerizado, quando irradiado com a dose de 10Gy. Isto provavelmente se deve a reações desencadeadas pelos radicais livres que resultaram em um aumento adicional no grau de polimerização do compósito. Hsiue & Ghang (1993) e Kamel & Neri (1979) estudaram o efeito da radiação gama na carga inorgânica e no agente de união que compõem compósitos restauradores odontológicos, utilizando nas pesquisas compósitos com a carga e o agente de união irradiados e com carga e o agente de união não irradiados, e observaram aumento estatisticamente significativo na dureza de superfície nos compósitos que apresentavam a carga inorgânica e o agente de união irradiados. Assim, os nossos achados assemelham-se aos resultados de Hsiue & Ghang (1993) e Kamel & Neri (1979) que concluíram que a irradiação promove um aumento na dureza de superfície dos compósitos odontológicos estudados, por conseguinte nós concordamos com esses autores.

Segundo Yearn (1985), a polimerização insuficiente pode resultar em solubilidade e pobre selamento da restauração e ainda conduzir inevitavelmente à decomposição do material restaurador e à ocorrência de cáries secundárias. Neste nosso trabalho, com 10Gy de radiação X, foi possível comprovar uma polimerização adicional, o que iria suprir uma possível polimerização insuficiente e a perda de propriedades do material.

A quantidade de duplas ligações presentes nos monômeros que são convertidas em ligações simples para formar a cadeia polimérica durante o

processo de polimerização é denominada de grau de conversão e, segundo Venhoven *et al.* (1993), maiores valores de grau de conversão podem resultar em maior contração de polimerização e conseqüentemente maior infiltração marginal. Nesta nossa pesquisa, não se estudou a infiltração marginal, contudo demonstrou-se indiretamente o aumento do grau de conversão através da dureza.

Com relação aos testes de rugosidade e resistência à abrasão, não foram observados efeitos significantes devido à irradiação X. Na análise da resistência à abrasão houve diferença estatisticamente significativa, em decorrência do ensaio de escovação e não pelo efeito da radiação X. Em um estudo prévio Curtis Jr *et al.*, em 1991, analisando a resistência à abrasão de três compósitos fotopolimerizáveis (P-50/3M, Silux Plus/3M e Valux/3M) não observaram efeito algum nas características de abrasão destes compósitos quando expostos à radiação gama com as doses de 1, 5, 10, 20, 50 e 80Gy, o que corrobora os resultados do presente estudo. Os resultados desta nossa pesquisa também estão semelhante aos de Haque *et al.* (2001), que avaliou a resistência à abrasão por meio do peso de corpos-de-prova constituídos pelo monômero UDMA e não obteve diferenças estatisticamente significantes entre o grupo irradiado e o grupo controle. Kamel & Neri (1979), compararam a resistência à abrasão de compósitos contendo a carga inorgânica (quartzo) e o agente de união irradiados e compósitos com carga inorgânica e o agente de união não irradiados e observaram que a resistência à abrasão não apresentou alterações estatisticamente significantes, como foi comprovado por nosso estudo.

Como resultado da radiação ionizante em polímeros, podem ocorrer as seguintes reações químicas: a) ligação cruzada de cadeia aumentando o peso molecular; b) cisão de cadeia efetuando uma diminuição dentro do peso molecular e, assim, mudando substancialmente algumas propriedades dos materiais poliméricos (Schnabel, 1981; Reichmanis *et al.*, 1993; Cleland *et al.*, 2003). Geralmente as propriedades mecânicas dos polímeros que sofreram principalmente ligação cruzada, devido à irradiação, são melhoradas, por exemplo,

a elasticidade, a resistência à tração e a dureza aumentam enquanto a solubilidade diminui com o aumento da dose. Entretanto, quando altas doses são absorvidas, os polímeros tornam-se muito duros e friáveis (Schnabel, 1981). Neste nosso estudo, comprovou-se que a dureza de superfície aumenta quando se irradia um polímero com 10Gy de radiação X, assim, pode ser sugerido que há uma prevalência de reações de ligação cruzada no compósito aqui estudado, quando irradiado com a dose de 10Gy.

Pelos resultados químicos dos espectros e com base nos efeitos esperados da irradiação por raios X em polímeros, podemos observar que alguns grupos funcionais foram consumidos, mas novos grupos foram formados. As bandas em 1118 e 3382cm^{-1} , estão relacionadas com a solubilidade do compósito, apesar do grupo funcional N-H não sofrer alteração significativa em relação ao controle, em 1118cm^{-1} podemos verificar uma redução significativa do grupo funcional C-OH nas amostras irradiadas com 1, 5 e 10Gy. Assim, os corpos-de-prova irradiados com estas doses sofreram uma diminuição da solubilidade, enquanto a amostra irradiada com 2Gy não apresentou alteração neste aspecto.

Na região entre 1400 e 1750cm^{-1} , os resultados sugerem uma alteração estrutural no polímero pela irradiação com 1Gy. Há diminuição dos seguintes grupos funcionais C=O, C-H e C-C, mostrando que houve cisão de cadeia ou ligação cruzada nestes grupos. Na irradiação com 5 e 10Gy, houve energia suficiente para provocar o aparecimento de novos produtos originados de reações químicas. Com a dose de 5Gy aumentam os grupos C=C, C-C e C-H, e com a dose de 10Gy surgem grupos C-C. Entretanto, na dose de 10Gy, também há diminuição de grupos C=O. Os grupos funcionais relativos a essa faixa do espectro, na amostra irradiada com 2Gy, apresentaram poucas alterações em relação ao controle.

Na região ou banda de 1280cm^{-1} (C-O-C), todas as doses apresentaram diminuição desse grupo funcional. A região abaixo de 1280cm^{-1}

também mostrou diminuição dos grupos funcionais em todas as doses, sendo que na dose de 2Gy obteve-se o espectro mais próximo ao do controle. Pode-se observar, por meio dos resultados dos espectros obtidos neste estudo, que os grupos funcionais não aumentam ou diminuem linearmente em relação às doses.

Algumas das reações apresentadas a seguir podem ser sugeridas como responsáveis pela diminuição ou aumento das bandas no espectro:- perda de CO₂, perda de CO, abstração de hidrogênio, alteração nos grupos aromáticos resultante de uma adição de radicais ao anel do bis-EMA e adição de oxigênio devido às diversas insaturações que sofreram ataque de oxigênio do ar, ou do meio líquido (água), durante a fase de irradiação. Além das reações acima consideradas, qualquer radical formado poderá reagir com um outro radical, formando uma nova ligação e/ou um ponto de reticulação. Alguns efeitos da reticulação podem ser benéficos ao material, como, por exemplo, o aumento de sua resistência mecânica (dureza). Por outro lado, a reticulação reduz bastante a mobilidade das moléculas envolvidas nas reações e pode chegar a impedir que grupos potencialmente reativos sejam utilizados. Assim, com o aumento da reticulação, as cadeias se tornarão cada vez mais fixas e as reações passam a ser dificultadas.

Devido à indução pelos raios X, alguns grupos foram consumidos e outros formados, ao mesmo tempo, em todas as doses pesquisadas neste estudo. Por esse motivo, não são observados reduções ou aumentos contínuos de intensidade das bandas atribuídas ao polímero com o aumento da irradiação. Sabe-se que em reações fotoquímicas de moléculas orgânicas até dez ou quinze diferentes produtos podem ser formados (March, 1992), por isto, estabelecer o destino exato de todas as moléculas que absorvem energia e de todos os radicais livres formados em uma reação radio-induzida é tão difícil de se executar quanto em uma reação fotoquímica.

Em 2001, Haque *et al.* analisaram o efeito de 640Gy de radiação gama sobre o uretano dimetacrilato (UDMA) fotopolimerizado por meio do espectrômetro de infravermelho com transformações de Fourier e constataram uma diminuição nas bandas C=C após a irradiação e sugeriram uma polimerização adicional dos monômeros residuais em decorrência dos raios gama. No trabalho de Haque *et al.*, o espectro apresentou uma diminuição em todos os grupos funcionais do monômero irradiado em relação ao controle. Neste nosso estudo o material analisado foi diferente do de Haque *et al.*, utilizou-se um compósito que apresenta uma mistura de monômeros com cargas inorgânicas e obtivemos espectros que mostraram diminuição e aumento dos grupos funcionais em relação ao grupo controle, em todas as doses analisadas.

Burnay, em 1980, analisou por meio de um espectrômetro de infravermelho a ação da radiação ionizante no compósito diglicidil éter bisfenol A polimerizado quimicamente por meio de diamina etileno. Nos espectros observados, houve formação dos grupos carbonil e difenil etileno nas amostras irradiadas em relação ao controle. Todos os grupos formados aumentavam em quantidade linearmente com o aumento da dose. Burnay, em 1982, também estudou a ação da radiação ionizante no compósito diglicidil éter bisfenol A quimicamente polimerizado com diamina difenil metano, e os resultados da análise no espectrômetro de infravermelho mostraram a produção dos grupos funcionais difenil etileno e carbonil e também de radicais fenil, fenoxil e difenil. Entretanto, houve diminuição dos grupos O-H, C-O, CH₂, CH₃ e anéis aromáticos nos corpos-de-prova irradiados em relação ao controle não irradiado. Burnay observou, então, que alguns grupos funcionais não aumentavam ou diminuía linearmente com a dose. Verificou-se, por meio dos resultados das pesquisas de Burnay associados aos resultados desta nossa pesquisa, que há espectros diferentes para diferentes polímeros irradiados. Segundo Reichmanis *et al.* (1993) algumas ligações químicas e grupos são particularmente sensíveis a reações radio-induzidas, como exemplos temos o COOH, C-X no qual X é um halógeno, SO₂, NH₂ e C=C. Por

outro lado, existem grupos que são mais resistentes à radiação ionizante como os aromáticos. E, de acordo com Cleland *et al.* (2003), ambas ligação cruzada e cisão de cadeia ocorrem devido à irradiação, mas uma ou outra pode ser predominante, dependendo da constituição do polímero e da dose de radiação ionizante absorvida pelo polímero.

A partir dos resultados de Burnay (1980, 1982), Reichmanis *et al.* (1993), Haque *et al.* (2001), Cleland *et al.* (2003) associados aos deste nosso estudo, pode-se sugerir que a variação do aumento e diminuição dos grupos funcionais, que apresentaram ligação cruzada ou cisão de cadeia, está em função da dose de radiação X, da estrutura espacial e constituição do polímero, e das oportunidades dos radicais livres de estarem mais próximos a uma determinada ligação, induzindo as reações químicas.

Através dos resultados obtidos no presente estudo verificou-se que não houve efeitos prejudiciais na dureza de superfície, rugosidade e resistência à abrasão do compósito resultante da irradiação X durante o período avaliado, embora o estudo do espectro químico tenha mostrado alterações na estrutura do polímero em decorrência de reações provocadas pelos raios X. Novas análises devem ser realizadas com intervalos de tempo maiores para verificar se não há deterioração no compósito, podendo então ser indicado em nível terapêutico antes da radioterapia na região de cabeça e pescoço, evitando a confecção de restaurações provisórias e, conseqüentemente, novas intervenções bucais no período pós-radioterapia.

7 CONCLUSÃO

A partir dos resultados obtidos:

- Houve um aumento significativo da dureza de superfície Knoop no grupo que foi irradiado com a dose de 10Gy, mostrando que houve uma polimerização adicional em decorrência da irradiação com os raios X.
- Os resultados nos possibilitam sugerir que houve, nas doses estudadas para esse polímero, um maior número de ligações cruzadas do que cisão de cadeias, o que confirmaria o aumento na dureza, com a dose de 10GY.
- A rugosidade de superfície não sofreu alterações significantes quando o compósito foi irradiado até a dose de 10Gy, durante o período avaliado.
- A resistência à abrasão do compósito Z250, quando submetido ao ensaio de escovação, não foi afetada pelos raios X, quando irradiado até a dose de 10Gy, no período avaliado.
- Observam-se dois fenômenos distintos, e concomitantes, como efeito da radiação X em todas as doses avaliadas, alguns grupos funcionais foram consumidos e novos grupos funcionais foram formados em relação à amostra controle.

REFERÊNCIAS*

1. Burnay SG. Radiation-induced changes in the structure of an epoxide resin. **Radiat Phys Chem.** 1980; 16: 389-97.
2. Burnay SG. Radiation induced structural changes in an epoxide resin system-II. **Radiat Phys Chem.** 1982; 19(2): 93-9.
3. Cleland MR, Parks LA, Cheng S. Applications for radiation processing of materials. **Nucl Instrum Meth B.** 2003; 208: 66-73.
4. Curtis Jr PM, Farman AG, Von Fraunhofer JA. Effects of gamma radiation on the in vitro wear of composite restorative materials. **J Dent.** 1991; 19: 241-4.
5. Faria SL, Chiminazzo Jr H. Acelerador linear x cobalto-60: há diferença no resultado da radioterapia dos tumores entre estes dois aparelhos? **J Bras Urol.** 1984; 10(4): 154-6.
6. Haque S, Takinami S, Watari F, Khan MH, NAKAMURA M. Radiation effects of carbon ions and gamma ray on UDMA based dental resin. **Dent Mater.** 2001; 20(4): 325-38.
7. Hsiue GH, Chang HL. The effects of radiation-modified silica and monomeric diluents on the properties of dental composite resins. **Angew Makromol Chem.** 1993; 63-77.
8. Kamel IL, Neri GA. Radiation modified filler for dental restorative composites. **Radiat Phys Chem.** 1979; 14: 603-11.

* De acordo com a norma da UNICAMP/FOP, baseada no modelo Vancouver. Abreviatura dos periódicos em conformidade com o Medline.

9. Langel MCM, Louro RW. High-level dosimetry by radiation induced free radicals in dental restorative resins. **Nucl Instrum Meth B**. 1986; 16: 419-23.
10. March J. **Advanced organic chemistry; reactions, mechanisms and structure**. 4. ed. Tokyo: McGraw-Hill International Book; 1992. p. 223-4.
11. Reichmanis E, Frank CW, O'donnell JH. **Irradiations of polymeric materials: processes, mechanisms and applications**. Washington : American Chemical Society; 1993. p. 1-7.
12. Schnabel W. **Polymer degradation – principles and practical applications**. München: Hanser International; 1981. p. 95-153.
13. Venhoven BMA, Gee AJ, Davidson CL. Polymerization contraction and conversion of light-curing Bis-GMA-based methacrylate resins. **Biomaterials**. 1993; 14(11): 871-5.
14. Von Franhofer JA, Curtis Jr P, Sharma S, Farman AG. The effects of gamma radiation on the properties of composite restorative resins. **J Dent**. 1989; 17: 177-83.
15. Yearn JA. Factors affecting cure of visible light activated composites. **Int Dent J**. 1985; 35: 218-25.
16. Willians JR, Tlwaites DI. **Radiotherapy physics in practice**. 2. ed. Oxford: University Press; 2000. p. 20-30.

BIBLIOGRAFIA

1. Hansen DL. **Sprouse Collection of Infrared Spectra, Book 1: Polymers.** Paoli: Sprouse Scientific Systems; 1987.
2. Pouchert CJ. **The Aldrich Library of FT-IR Spectra.** 3. ed. Milwaukee: Aldrich Chemical Company; 1981.
3. Silverstein RM, Bassler GC, Morrill TC. **Identificação espectrométrica de compostos orgânicos.** 5. ed. Rio de Janeiro: Guanabara Koogan; 1994. p. 67-101.