



UNIVERSIDAD NACIONAL AUTÓNOMA DE MÉXICO

FACULTAD DE ODONTOLOGÍA

Síntesis del trietilenglicoldimetacrilato (TEGDMA)
para uso en Odontología

T E S I S
QUE PARA OBTENER EL TÍTULO DE:
CIRUJANO DENTISTA
P R E S E N T A :
GUILLERMO ESCAMILLA MORALES

TUTOR: DR. CARLOS ANDRÉS ÁLVAREZ GAYOSSO
ASESOR : MTRO. JORGE MARIO PALMA CALERO



FACULTAD DE
ODONTOLOGÍA

MÉXICO, D. F.

2004



Universidad Nacional
Autónoma de México



UNAM – Dirección General de Bibliotecas
Tesis Digitales
Restricciones de uso

DERECHOS RESERVADOS ©
PROHIBIDA SU REPRODUCCIÓN TOTAL O PARCIAL

Todo el material contenido en esta tesis esta protegido por la Ley Federal del Derecho de Autor (LFDA) de los Estados Unidos Mexicanos (México).

El uso de imágenes, fragmentos de videos, y demás material que sea objeto de protección de los derechos de autor, será exclusivamente para fines educativos e informativos y deberá citar la fuente donde la obtuvo mencionando el autor o autores. Cualquier uso distinto como el lucro, reproducción, edición o modificación, será perseguido y sancionado por el respectivo titular de los Derechos de Autor.

**ESTA TESIS FUE REALIZADA CON
EL ESTÍMULO ECONÓMICO
DEL PROGRAMA DE APOYO A PROYECTOS DE
INVESTIGACIÓN E INNOVACIÓN TECNOLÓGICA
(PAPIIT)**

**PROYECTO No. IN117603
DESARROLLO DE MOLÉCULAS ORGÁNICAS PARA
LA PREPARACIÓN DE MATERIALES RESTAURATIVOS
ESTÉTICOS DE USO DENTAL**

**RESPONSABLE
DR. FEDERICO BARCELO SANTANA**

**CORRESPONSABLE
DR. CARLOS ÁLVAREZ GAYOSSO**

AGRADECIMIENTOS

Al Dr. Carlos Andrés Álvarez Gayosso, por su amistad, tiempo, paciencia, dedicación y conocimientos compartidos durante todo este tiempo.

A la Dra. Mirna Estrada Yáñez, por brindar su paciencia, conocimientos, confianza, tiempo y las instalaciones para la realización de esta investigación.

Al Instituto de Investigaciones en Materiales de la UNAM, por proporcionar las instalaciones y equipo necesario.

Al Mtro. Jorge Mario Palma por dedicar su tiempo, amistad y conocimientos.

Al Dr. Federico H. Barceló S. por su amistad, interés y confianza.

Al Mtro.. Jorge Guerrero y a la CD. Teresa Baeza por compartir, sus conocimientos, amistad y tiempo.

A la Dra. Martha Angélica por sus consejos y amistad que me guiaron durante mi carrera profesional.

A todo el personal de Laboratorio de Materiales Dentales, muchas gracias.

A la Universidad Nacional Autónoma de México y a todos sus excelentes académicos que me brindaron el tiempo necesario para llegar a ser un profesional, muchas gracias.

A Dios por haberme permitido ser un hombre de bien y llegar a cumplir uno de mis grandes anhelos.

A mi padre por su infinito apoyo y amor que me ha brindado.

A mi madre por su paciencia, amor, sabiduría e inagotables fuerzas que me ha regalado durante toda la vida.

A Lalo, Edgar y Miguel por haberme ayudado y soportado durante todos estos años.

A mis abuelos por tener el tiempo para escucharme y regalarme sus inagotables consejos.

A mis tíos Lalo, Mario, Jose y Luis por haberme brindado su confianza y apoyo.

A mis amigos: Alejandro, Aldo, Erick, Tania, Silvia, Erendira y Karina por permitirme llegar a compartir el sueño de crecer juntos.

A Ale por su interés, tiempo y cariño brindados.

ÍNDICE

	PÁGINAS
<u>Resumen</u>	1
<u>Introducción</u>	2
<u>Capítulo I</u>	
Polímeros	4
<u>Capítulo II</u>	
Resinas compuestas para restauración	13
• Matriz de resina	14
• Partículas de relleno	15
• Agentes de acoplamiento	17
• Sistema activador e iniciador	18
• Inhibidores	19
• Modificadores ópticos	19
<u>Capítulo III</u>	
Trietilenglicol de dimetacrilato	20
• Historia y origen	20
• Aplicaciones del etilenglicol	21
III.1 – Síntesis	24

ÍNDICE

Capítulo IV

Caracterización	27
IV.1 - Espectroscopía infrarroja	27
IV.2 - Índice de refracción	31
IV.3 - Viscosimetría	33
IV.4 - Contracción y encogimiento	35

Capítulo V

Diseño experimental	40
V.1 Desarrollo Experimental	40
• Planteamiento del problema	40
• Justificación del estudio	41
• Hipótesis	42
• Objetivos	42
• Tipo de Estudio	43
• Definición de variables	43
V.2 Metodología	44
• Síntesis	44
• Purificación	44
• Caracterización	45

ÍNDICE

<u>Capítulo VI</u> Resultados Experimentales	51
<u>Capítulo VII</u> Discusión	57
<u>Capítulo VIII</u> Conclusiones	60
<u>Referencias</u>	61

RESUMEN

El trietilenglicol de dimetacrilato (TEGDMA) es un monómero que contienen las resinas compuestas y cuya principal función es disminuir la viscosidad del monómero de Bowen (bisglicidilmetacrilato).

Para la obtención del TEGDMA se realizó una reacción de transesterificación del metilmetacrilato con trietilenglicol.

Se evaluaron distintos parámetros: El índice de refracción, la viscosidad, el encogimiento y el análisis de espectroscopía infrarroja, tanto del monómero sintetizado como del monómero comercial, todo esto con el objeto de llevar a cabo una comparación.

Los resultados experimentales muestran que el TEGDMA obtenido, al ser evaluado con los valores del comercial, presenta características similares, aún así, existen ligeras variaciones en su comportamiento, debido a que no se ha podido purificar completamente; sin embargo, los resultados de encogimiento son menores a los encontrados al probar el TEGDMA comercial.

Los logros generados durante la investigación representan un adelanto en la creación de compuestos dentales, sin embargo, se requieren mayores estudios para corroborarlo.

INTRODUCCIÓN

Las resinas sintéticas se incluyen como materiales de restauración porque son insolubles en la cavidad bucal, estéticas, económicas y relativamente fáciles de manejar. Fueron introducidas a finales de los años cuarenta y principios de la década de 1950, parcialmente reunieron los requisitos de materiales estéticos y durables para dientes anteriores. En la actualidad han tenido un gran avance tanto en su composición química como en sus cualidades físicas.

Las resinas sintéticas están constituidas por moléculas pequeñas (monómeros) que son capaces de crecer y formar una gran molécula (polímeros), y que, al agregarles partículas inorgánicas, son denominadas materiales compuestos o resinas compuestas.

La mayor parte de los materiales compuestos usan monómeros del tipo diacrilato. Los monómeros de alto peso molecular son extremadamente viscosos a temperatura ambiente, por lo tanto, es esencial el uso de monómeros diluyentes principalmente para alcanzar un nivel elevado de relleno y producir un compuesto de consistencia clínicamente manejable. Los diluyentes pueden ser monómeros de metacrilato o de dimetacrilato, como el trietilenglicol de dimetacrilato.

El trietilenglicol de dimetacrilato es uno de los principales compuestos de las resinas odontológicas que tiene como efecto proporcionar una viscosidad adecuada a éstas para poder ser manipuladas.

I. POLÍMEROS

El polímero es una sustancia que consiste de grandes moléculas formadas por muchas unidades pequeñas que se repiten, llamadas monómeros.

La mayoría de las sustancias orgánicas presentes en la materia viva, como las proteínas, la madera, el caucho y las resinas, son polímeros; también lo son muchos materiales como los plásticos, las fibras y los adhesivos.

El nombre genérico de plásticos corresponde a un grupo de sustancias sintéticas, que provienen de la gran química del carbono o coloides orgánicos. El descubrimiento de los polímeros a partir de determinadas reacciones orgánicas ha sustituido en gran parte a los metales.

Los polímeros tienen una gran cantidad de aplicaciones dentro del campo de la Odontología debido a que algunas de sus propiedades pueden ser modificadas para cubrir los requerimientos específicos de cada material. ⁽¹⁾ Estos materiales deben cumplir ciertos requisitos como: resiliencia, resistencia a la abrasión, estabilidad dimensional, translucidez, estabilidad de color, resistencia a los fluidos bucales, biocompatibilidad, baja toxicidad y fácil manipulación.

Sólo algunas resinas tienen todos estos requisitos. La gran mayoría de ellas se utilizan para la fabricación y reparación de prótesis, elaboración de portaimpresiones individuales, mantenedores de espacio temporales, planos de mordida, obturadores palatinos. Dentro de la operatoria dental, los polímeros se utilizan como ingredientes de algunos materiales de restauración, cementos, adhesivos, forros cavitarios, selladores de fosetas y materiales de impresión como los elastómeros. ⁽²⁾

Dependiendo de la elección de los monómeros o los comonómeros, pueden hacerse polímeros que sean gomosos (materiales para impresión), vítreos (resina acrílica), o adhesivos (policarboxilatos, selladores). Los principales polímeros utilizados en el campo de la Odontología son:

1. Materiales para impresión a base de mercaptanos. Basándose en los grupos mercaptanos (-SH) se les puede adquirir en forma de prepolímeros y son iniciados por un agente oxidante, generalmente peróxido de plomo.
2. Materiales para impresión a base de siliconas. Los prepolímeros de grupos siloxanos son iniciados a una ulterior polimerización por sales organometálicas tales como el octanato de estaño.
3. Polímeros para prótesis. Generalmente están compuestos por metacrilato de metilo con una unión acrilato de doble ligadura: el polvo es metacrilato de metilo prepolimerizado en forma de pequeñas partículas esféricas a las que se agrega pigmentos de color y el iniciador, peróxido de benzoilo. El

líquido es monómero de metacrilato de metilo, con un inhibidor como la hidroquinona. La polimerización se logra por calentamiento o a través de un activador químico (autopolimerización).

4. Cementos de policarboxilato e ionómero de vidrio.
5. Resinas.
6. Materiales para impresión a base de alginatos (hidrocoloides irreversibles).
Son considerados polímeros de alginato de calcio con rellenos. Cuando se mezclan con agua forman un gel elástico que polimeriza.

En el campo de la odontología, la influencia de los polímeros es cada vez mayor, ya que se utilizan en Operatoria, Ortodoncia, Prótesis, Odontología Estética, etc.

Las propiedades de los polímeros dependen de:

1. Las uniones fundamentales (monómeros, comonómeros).
2. El grado de polimerización (número de unidades de monómero por macromolécula).
3. La estructura molecular, la cantidad y el tipo de uniones no saturadas del monómero.
4. El grado de entrecruzamiento de las cadenas de polímero, o aún de cristalización.
5. La cantidad de ramas y uniones cruzadas. Cuanto más largas sean las cadenas, más grandes serán las unidades, o más complicada será la red;

por lo tanto, aumentará la dureza, la rigidez y la fragilidad, mientras la resistencia al impacto y la resistencia transversal serán menores.

6. La temperatura reduce la resistencia y produce propiedades gomosas.

Los polímeros pueden dividirse en cuatro grupos estructurales:

Polímeros lineales: consisten en largas cadenas de monómeros unidas por enlaces (polietileno, alcohol polivinilo y el cloruro de polivinilo).

Polímeros ramificados: tienen cadenas secundarias que están unidas a la cadena principal. La ramificación puede ser producida por impurezas o por la presencia de monómeros que tienen varios grupos reactivos.

Polímeros compuestos: son monómeros con grupos secundarios que forman parte del monómero, como el poliestireno o el polipropileno, no se consideran polímeros ramificados.

Polímeros entrecruzados: dos o más cadenas están unidas por cadenas secundarias. Con un grado pequeño de entrecruzamiento se obtiene una red poco compacta esencialmente bidimensional. Los grados elevados de entrecruzamiento dan lugar a una estructura compacta tridimensional. El entrecruzamiento es producido normalmente por reacciones químicas.⁽³⁾

La polimerización consiste en una serie de reacciones químicas por las cuales se forma una macromolécula o polímero a partir de una gran cantidad de moléculas simples llamadas monómeros. El polímero consta de determinada unidad estructural simple que se repite. Las unidades estructurales están conectadas entre sí por uniones covalentes. En algunos casos, el peso molecular de la molécula de polímero puede llegar a 50,000,000. Se considera macromolécula todo compuesto químico cuyo peso molecular sea mayor de 5,000.
(4)

Otra forma de dividirlos son en homopolímeros y copolímeros. Los homopolímeros son polímeros con un solo tipo de unidad que se repiten. En los copolímeros se repiten varias unidades distintas.

Las moléculas de un polímero constan de especies moleculares cuyo grado de polimerización varía dentro de un amplio margen. Este grado promedio de polimerización se puede obtener dividiendo el número total de unidades estructurales entre el número total de moléculas. Otra manera de expresar el grado de polimerización es el número promedio del peso molecular de los diversos polvos de polímeros dentales comerciales que varía entre 3,500 y 36,000, y una vez polimerizados, sus pesos moleculares promedio están entre 8,000 y 39,000.

La macromolécula puede ser un polímero inorgánico, como el silicón, el grafito o la arcilla. Sin embargo, los polímeros usados en Odontología son principalmente orgánicos.

Efectos biológicos

Los polímeros totalmente polimerizados tienden a ser inertes, pero la mayoría de los monómeros, activadores e iniciadores pueden ser irritantes intensos. ⁽⁵⁾ Los problemas que pueden surgir cuando los tejidos se ponen en contacto con polímeros no curados completamente son los siguientes:

1. Los materiales que producen radicales libres pueden unirse en forma cruzada con las proteínas provocando irritación tisular.
2. Debido a su falta de estabilidad dimensional, algunos materiales poliméricos utilizados en odontología restaurativa pueden provocar microfiltración en torno a las restauraciones, lo que trae como resultado la irritación de la pulpa debido a la introducción de bacterias provenientes de la saliva.
3. Los polímeros, los monómeros, los iniciadores o los activadores pueden provocar reacciones alérgicas.

Propiedades físicas de los polímeros

Las propiedades físicas están afectadas por casi todos los cambios de temperatura, medio ambiente, composición, peso y estructura molecular. Por lo general, cuanto más elevada sea la temperatura, más se ablandará y debilitará el polímero. ⁽⁶⁾

A medida que las moléculas se van formando, aumentan las uniones secundarias o fuerzas intermoleculares que las mantienen juntas. Por ello, las propiedades relacionadas con estas fuerzas, como la temperatura de ablandamiento y la resistencia a la tensión tienden a aumentar también. ⁽⁶⁾ Los polímeros no presentan resistencia mecánica notable hasta que no alcanzan un promedio mínimo del grado de polimerización.

Tipos de polimerización

La polimerización puede efectuarse por una serie de reacciones de condensación o por simples reacciones de adición. ⁽⁷⁾

- **Polimerización por condensación**

Esta reacción corresponde a un grupo de polímeros que forman cadenas y productos secundarios como agua, alcoholes y halógenos, los cuales interfieren en el crecimiento de las cadenas. La polimerización por condensación ocurre gracias al mismo mecanismo que las reacciones químicas similares entre dos o más moléculas simples.

La baquelita, los poliuretanos, el nylon, los materiales para impresión a base de siliconas, y los mercaptanos son ejemplos de este tipo de polimerización, los cuales no logran la formación de grandes moléculas.

- **Polimerización por adición**

Corresponde al grupo de polímeros de excelentes propiedades físicas de gran utilidad en el área de la Odontología. El proceso de formación de cadenas se hace por adición. En este proceso no existen productos secundarios. A diferencia de la polimerización por condensación, no hay cambio en la composición; las macromoléculas se forman a partir de unidades más pequeñas o monómeros, sin cambio en la composición pues el monómero y el polímero tienen las mismas fórmulas.

Las moléculas se forman a partir de un centro activo que incorpora un monómero a la vez y arma una cadena que, en teoría puede seguir creciendo indefinidamente hasta que lo permite el aporte de unidades constitutivas.

En la química de polímeros por adición, se parte de los monómeros que contienen moléculas con grupos no saturados (dobles enlaces). Para abrir estos dobles enlaces, es necesaria la presencia de un iniciador, que crea radicales libres aptos para la unión por adición entre cada una de las unidades estructurales y así conformar la cadena del polímero.

El proceso de polimerización se efectúa en cuatro periodos: inducción, propagación, terminación y transferencia de cadena.

a) Inducción o iniciación. En este periodo se activa al iniciador por medio de energía química o física (radiación luminosa a través de luz ultravioleta, visible o aumento de temperatura). Las moléculas del iniciador adquieren energía y comienzan a transferirla a las moléculas del monómero. Aquí influye mucho la pureza del monómero; toda impureza que reaccione con los grupos activados alargará el periodo de polimerización. A mayor temperatura más corto el periodo de inducción.

b) Propagación o conformación de cadena. El iniciador, se transforma formando radicales libres los que a su vez, abren las uniones del monómero de manera que se produce la propagación o formación de cadenas, el proceso continúa con una reacción en cadena con la evolución del calor, hasta que la mayoría del monómero se transforma en un polímero.

c) Terminación. La propagación continúa hasta el momento en que ya no se encuentren más radicales libres.

d) Trasterencia de cadena. Activación de una cadena a otra ya terminada, generando un nuevo crecimiento en dicha cadena, aumentando el peso molecular.

II. RESINAS COMPUESTAS PARA RESTAURACIÓN

El desarrollo de los materiales para restauración, se inició a finales de la década de 1950 y principios de 1960 cuando Bowen empezó los experimentos para reforzar las resinas epóxicas con partículas de relleno ⁽⁸⁾. La deficiencia de las resinas epóxicas, como su baja velocidad de curado y su tendencia a decolorarse, estimularon el trabajo de Bowen, al combinar las ventajas de las resinas epóxicas y los acrilatos. Su trabajo finalizó con el desarrollo de la molécula de bisglicidimetacrilato (BisGMA), la cual cumple con muchos de los requisitos de la matriz de resina para los compuestos dentales, reemplazando así, a los cementos de silicato y a las resinas acrílicas como materiales de restauraciones estéticas de dientes anteriores. ⁽⁸⁾

Los materiales de restauración modernos contienen varios componentes, los principales constituyentes son la matriz de resina y las partículas inorgánicas de relleno; además de estos dos constituyentes se requieren otros componentes para lograr la efectividad y durabilidad del material. Es necesario un agente denominado silano para mantener el enlace entre las partículas de relleno inorgánico y la matriz de resina. Además se necesita un iniciador y un activador para obtener el polímero. Pequeñas cantidades de otros aditivos proporcionan estabilidad de color (absorben la luz ultravioleta) y previenen un polimerizado prematuro. Los compuestos de la matriz inorgánica también deben contener pigmentos que proporcionen un color aceptable al compararlo con la estructura del diente.

Matriz de resina

La matriz de resina está constituida por diacrilatos aromáticos o alifáticos como el BisGMA, dimetacrilato de uretano (UDMA) o dimetacrilato de trietilenglicol. ⁽⁴⁾

La matriz de BisGMA o monómero de Bowen se obtienen a partir de 3 moléculas: Bisfenol A, alcohol glicídico y ácido metacrílico ⁽⁹⁾

La molécula del BisGMA tiene en el extremo de su cadena, dobles enlaces que permitirán la polimerización.

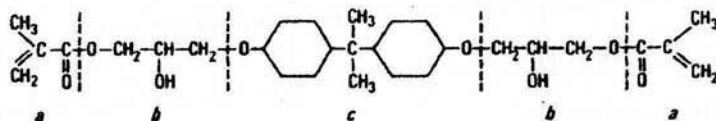


Figura 1. Representación química del BisGMA

Se destacan dos observaciones sobre esta molécula:

- La presencia de los dos ciclos aromáticos le confiere **rigidez**.
- La presencia de dos radicales hidroxilo -OH⁻ (Sección b de la Figura 1) permiten la formación de puentes de hidrógeno que producirán alta **viscosidad**.

Es la alta viscosidad del BisGMA, lo que provoca que éste no sea apto para usarse en odontología. Para disminuirla, se colocan monómeros de otros dimetacrilatos como el TEGDMA o el UDMA.⁽⁸⁾ Aunque las propiedades mecánicas del BisGMA son superiores a las de la resina acrílica (metil metacrilato), no se enlaza a la estructura dental con más eficacia, por lo tanto, la contracción de polimerizado y el cambio dimensional térmico son consideraciones importantes.

Además del monómero, otros aditivos se mezclan con la matriz de la resina, incluyendo un iniciador, un activador, inhibidores, absorbentes de luz ultravioleta, pigmentos y opacificadores. Estos componentes se presentan en pequeñas cantidades.⁽⁷⁾

Partículas de relleno

La incorporación de las partículas de relleno dentro de la matriz mejora significativamente sus propiedades, comparada con la resina sin relleno, la contracción de polimerizado se reduce, la absorción de agua y el coeficiente de expansión térmica son menores, las propiedades mecánicas como resistencia a la compresión, resiliencia, el módulo de elasticidad mejoran, así como la resistencia a la abrasión. Todos estos cambios ocurren con aumento de la fracción de volumen de relleno.⁽¹⁰⁾

Las partículas de relleno comúnmente son producidas por pulido o trituración de cuarzo o vidrio en tamaños que oscilan entre 0.1 y 100 μm . Las partículas de sílice de tamaño coloidal (alrededor de 0.04 μm), referidas como microrrelleno, se obtienen por procesos de precipitación.

Los compuestos se clasifican sobre la base del tamaño promedio del principal componente de relleno, además del grado de volumen del relleno y el tamaño. El índice de refracción, la radiopacidad y el endurecimiento también son factores que determinan las propiedades y la aplicación clínica de los compuestos resultantes.

Para asegurar estética aceptable de una restauración de compuestos, la translucidez del relleno suele ser similar a la estructura del diente. Para que la translucidez sea aceptable, el índice de refracción del relleno debe estar cercano al de la resina. Para el BisGMA y el TEGDMA, el índice de refracción está entre 1.55 y 1.46, respectivamente, y la mezcla de los dos compuestos en proporciones iguales por peso da un índice de refracción cercano a 1.5. Muchos cristales y el cuarzo que se usan para relleno también tienen índices de refracción aproximados a 1.5, que es adecuado para lograr suficiente translucidez.

La radiopacidad de los materiales de relleno se proporciona por el número de cristales y de cerámica que contienen de metales pesados, como el bario (Ba), el estroncio (Sr) y el circonio (Zr). Estos cristales también tienen índice de refracción aproximado a 1.5 cercano al de las resinas.

Agentes de acoplamiento

Es importante que las partículas de relleno se enlacen a la matriz de resina, esto permite que la matriz del polímero sea más flexible y transfiera las tensiones a las partículas de relleno más rígidas.⁽⁷⁾ El enlace entre las dos fases del compuesto es proporcionada por un agente de acoplamiento. Un agente de acoplamiento aplicado en forma adecuada puede impartir propiedades físicas y mecánicas mejoradas y proporcionar estabilidad hidrolítica para prevenir la penetración de agua a través de la interfase relleno-resina.

Los silanos orgánicos contienen grupos silanol que pueden enlazarse con silanoles sobre superficies de relleno, formando un enlace de siloxano (S-O-Si). Los grupos metacrilato del componente organosilano forman enlaces covalentes con la matriz inorgánica, por lo que se completa el proceso de acoplamiento.

La importancia del acoplamiento adecuado por medio de los silanos orgánicos es extremadamente importante para el funcionamiento clínico de los compuestos a base de resina.

Sistema activador-iniciador

Los monómeros de metil metacrilato y dimetil metacrilato polimerizan por el mecanismo de iniciación por radicales libres.⁽⁷⁾ Los radicales libres pueden ser generados por activación química o por activación energética (calor o luz).

Los materiales activados químicamente se presentan como dos pastas, una que contiene el iniciador, que puede ser el peróxido de benzoílo y la otra un activador que en ocasiones es una amina terciaria (N,N-dimetil-p-toluidina). Cuando estas dos pastas son mezcladas, la amina reacciona con el peróxido de benzoílo y forma radicales libres y de esta manera se inicia el polimerizado.

Los sistemas fotoactivados, pueden emplear luz ultravioleta o mas frecuentemente, luz de rango visible (azul) para activar los radicales libres, ello se logra a través de un fotoiniciador conocido como camforquinona, que está presente en la resina a niveles cercanos al 0.2 % del peso total del compuesto.

Inhibidores

Para minimizar o evitar la polimerización espontánea de los monómeros, se agregan inhibidores a los sistemas de resinas, éstos tienen fuerte potencial de reacción con los radicales libres. ⁽⁷⁾ Por ejemplo, si se ha formado un radical libre, por una breve exposición a luz cuando se ha dispersado el material, el inhibidor reacciona con el radical libre e inhibe la propagación de la cadena, evitando la capacidad del radical libre de iniciar el proceso de polimerización. Un inhibidor típico es la hidroquinona que se emplea en concentraciones de 0.01 % del peso total del compuesto.

Modificadores ópticos

Para lograr la apariencia del diente, los compuestos dentales deben tener coloración visual (matizado) y translucidez que pueda simular la estructura del diente. ⁽⁷⁾ El matizado se logra por la adición de diferentes pigmentos, Estos pigmentos a menudo consisten en óxidos metálicos diferentes que se agregan en cantidades pequeñas.

III. TRIETILENGLICOL DE DIMETACRILATO (TEGDMA)

Historia y origen

En el año de 1914, el químico Belga Leo Hendrik Baekeland (1863-1944) ⁽¹¹⁾ estudiaba un suplente de la goma laca y buscaba obtener una molécula gigante como la de la celulosa. Empezó con fenol y formaldehído como unidades moleculares o monómeros y produjo un polímero para el que no pudo encontrar un disolvente por lo que consideró que esa propiedad podría ser útil. La patente le fue otorgada en 1909 con el nombre "baquelita". ⁽⁹⁾ Debido a sus propiedades superiores, se le dieron miles de aplicaciones en la vida cotidiana. Se empezó a usar el término resina sintética para toda materia prima plástica originada en el laboratorio.

El etilenglicol generalmente designado simplemente glicol, es el producto derivado del óxido de etileno más importante.

El etilenglicol se obtiene (Figura 2) por adición de agua al óxido de etileno:

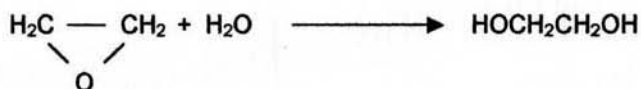


Figura 2. Reacción química para la obtención de etilenglicol

En el proceso industrial, el óxido de etileno se hace reaccionar con un exceso molar de diez veces de agua en fase líquida a presión normal y 50-70 °C en presencia de un catalizador ácido (por ejemplo, 0.5-1.0% H₂SO₄), o de 140 °C hasta 230 °C y 20-40 bars sin catalizador.

Si en la hidratación del óxido de etileno se disminuye la parte de agua, se forman progresivamente di, tri y polietilenglicoles.

Aplicaciones del etilenglicol

El etilenglicol tiene dos campos de aplicación principales: como anticongelante del circuito de refrigeración de los motores y como diol para la obtención de poliésteres. El producto más importante, el tereftalato de polietileno (PET), se emplea principalmente para la fabricación de fibras, aunque también para láminas y resinas. ⁽⁵⁾ La producción del etilenglicol se vio acelerada a consecuencia de ello, llegando a un crecimiento alto hacia el año de 1962, donde el 95% del mercado de anticongelantes automotrices utilizaba el etilenglicol como principal componente.

Otro de los mercados en los que ha incursionado el etilenglicol ha sido en la manufactura de poliésteres. Polímeros de éste tipo han tenido una excelente aceptación en el mercado de las fibras y películas fotográficas.

Actualmente el etilenglicol se usa en la creación de distintos componentes para alas de aeronaves y parabrisas, ayuda a disolver inhibidores, evita el aumento excesivo de volumen residual del caucho, retarda la combustión excesiva de los lubricantes, es un disolvente ideal para tintes y colorantes, entre otros.

Entre sus derivados figura el dietilenglicol, que es aplicado principalmente en la manufactura de poliuretano y resinas insaturadas de poliéster. Otra aplicación se incluye en la producción de trietilenglicol, que a su vez funciona como colorante textil, disolvente en la extracción de petróleo; es aplicado también como un humectante para el tabaco, como un agente emulsificante en la manufactura del vinil plastificado y como un disolvente para tintas de impresión.

El uso del trietilenglicol en la industria se remonta al año de 1945, su principal propiedad fue servir como disolvente del nitrato de celulosa, gomas y resinas. ⁽¹¹⁾ Sus propiedades químicas se han usado en distintas áreas de la industria, un claro ejemplo es como líquido para remover agua del gas natural y de los sistemas de aire acondicionado.

Los ésteres del trietilenglicol son importantes plastificadores, que dan origen a un sinnúmero de poliésteres que tienen una gran variedad de aplicaciones.

El trietilenglicol también es usado como un componente de las resinas de poliuretano. Su aplicación en el área odontológica, se debe a que su estructura química (Figura 3) proporciona fluidez al compuesto principal de la matriz del composite odontológico. ^(1,12)

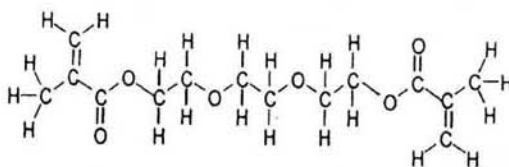


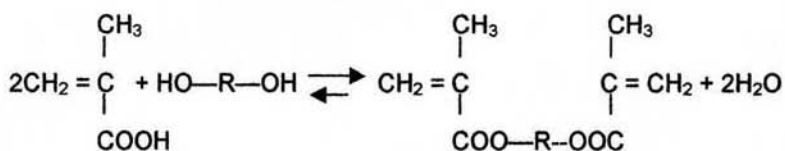
Figura 3. Representación química del TEGDMA

III.1 SÍNTESIS DEL TRIETILENGLICOLDIMETACRILATO

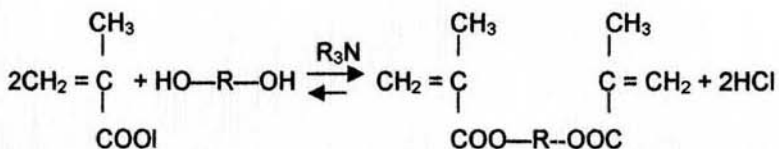
El trietilenglicoldimetacrilato (TEGDMA), puede llegar a ser sintetizado por distintos procedimientos. Algunos presentan limitaciones o ventajas al ser aplicados.

Éste monómero puede ser obtenido por uno de los siguientes procedimientos:^(12,13)

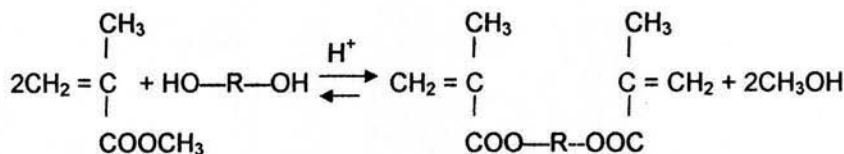
- 1) Esterificación del ácido metacrílico con poliglicoles.



- 2) Condensación del clorhidrato de metacrilato con poliglicoles en presencia de un ácido.



3) Transesterificación de metilmetacrilato con poliglicoles.



La industria del Trietilenglicoldimetacrilato se inició en la década de 1940 y a la fecha no han habido modificaciones a ninguno de los tres métodos usados para su síntesis.

La mayor parte de las resinas dentales usan monómeros que son diacrilatos aromáticos o alifáticos. BisGMA, dimetacrilato de uretano (UDMA) y dimetacrilato de trietilenglicol (TEGDMA) son los dimetacrilatos más usados en los compuestos dentales.

Los monómeros de alto peso molecular, particularmente el BisGMA, son extremadamente viscosos a temperatura ambiente debido a que la molécula de BisGMA tiene una estructura central rígida (dos anillos) y dos grupos $-\text{OH}$.

Es esencial el uso de monómeros diluyentes para alcanzar elevado nivel de relleno y producir una pasta de consistencia clínicamente manejable. Los diluyentes pueden ser monómeros de dimetacrilato, como el TEGDMA.

La reducción de la viscosidad es significativa cuando el TEGDMA es agregado a la molécula de BisGMA, una combinación de 75 % en peso de bis-GMA y 25 % en peso de TEGDMA tiene una viscosidad de 4300 cP (centiPoises), en tanto que la viscosidad de la combinación 50/50 es 200 cP. Los monómeros de dimetacrilato permiten que ocurra enlace cruzado entre cadenas, esto da por resultado una matriz más resistente a la degradación por los disolventes. ⁽¹²⁾

IV. CARACTERIZACIÓN

Para identificar los materiales y determinar sus características fisicoquímicas, se recurre a procesos de caracterización como son: espectroscopía infrarroja, índice de refracción, medición de viscosidad y medición de encogimiento. Cada método ayuda a identificar algunas características del trietilenglicol de dimetacrilato.

IV.1 ESPECTROSCOPIA INFRARROJA

La espectroscopía infrarroja (IR) es una técnica empleada principalmente en la elucidación de estructuras moleculares, aunque también se emplea con fines cuantitativos.

Esta técnica se basa en las distintas absorciones de radiación infrarroja que presentan los grupos funcionales que forman cada molécula.

Con el espectro de infrarrojo se puede saber fácilmente el tipo de compuesto (alcohol, amina, ácido, etc.), y con un análisis detallado de éste y su comparación con otros espectros catalogados, se logra en muchos casos elucidar completamente la estructura de la molécula.⁽¹⁴⁾

El infrarrojo abarca las regiones del espectro electromagnético comprendidas entre los números de onda de 12800 a 10 cm^{-1} que corresponde a longitudes de onda de 0.78 a $1000\ \mu\text{m}$, la región infrarroja del espectro se subdivide en tres posiciones denominadas infrarrojo cercano, medio y lejano.

La espectroscopía de infrarrojo se utiliza para la identificación de compuestos orgánicos, ya que los espectros correspondientes suelen ser complejos y contienen números máximos y mínimos que pueden servir para realizar comparaciones^(15,16). Es una técnica relativamente sencilla y no destructiva que maneja sólidos, líquidos y gases con un mínimo de cantidad de muestra y proporciona información que puede determinar los parámetros que se estudian.

La interacción entre las moléculas y la radiación infrarroja produce una onda electromagnética con número de onda entre 4000 y 400 cm^{-1} (región del lejano y cercano infrarrojo). Por lo tanto, el espectro de absorción infrarroja (IR) es único pues los niveles de energía molecular están bien determinados. Un ejemplo se muestra en la Figura 4.

La observación de espectros IR de un número de compuestos que contienen en común cierto grupo de átomos, muestra independientemente del resto de la molécula, a un grupo que absorbe en un intervalo de frecuencia determinada (frecuencia de grupo). Por ejemplo, las frecuencias del grupo metilo (CH_3) oscila entre 3000 y 2860 cm^{-1} . El concepto de frecuencia de grupo proviene de la hipótesis de que las vibraciones de un grupo particular son relativamente independientes del resto de la molécula.⁽¹⁷⁾

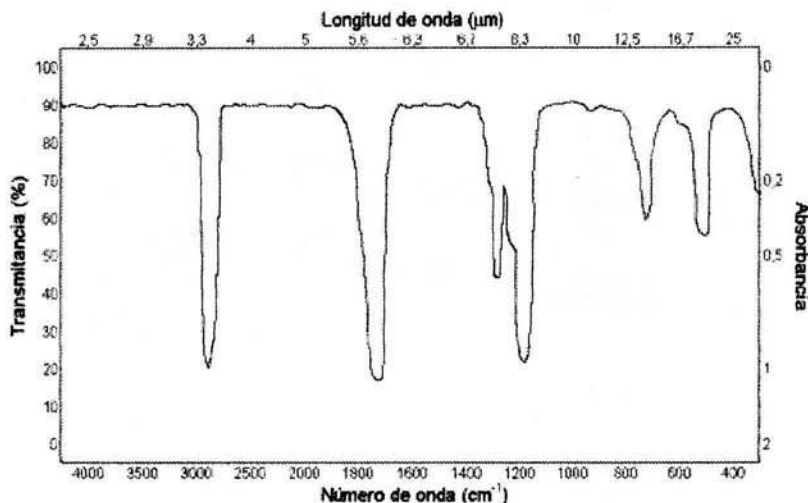


Figura 4. Ejemplo de un espectro de infrarrojo de un compuesto orgánico.

Los ácidos carboxílicos, -C(=O)-OH , están caracterizados por las bandas de alargamiento de -OH , bandas de alargamiento C=O , bandas de alargamiento C-O , bandas de flexión de plano -OH y por bandas fuera del plano de agitación de OH . Esas bandas son sensibles al estado de enlace del hidrógeno del grupo COOH , el cual puede existir como un monómero no unido y provocar que el ácido forme un dímero o, algunas veces, formar un enlace hidrógeno polimérico. Si hay otros grupos donadores o aceptores del enlace hidrógeno, existe la posibilidad de variaciones de enlaces de hidrógeno. La Tabla 1 muestra algunos valores de los grupos funcionales.

Tabla 1. Bandas características de grupos funcionales, cm^{-1}

ENLACE	FRECUENCIA	CARACTERÍSTICA
ALARGAMIENTO -OH	3610-3640	FUERTE
ALARGAMIENTO ANTISIMÉTRICO C=O	1740-1660	MUY FUERTE
ALARGAMIENTO SIMÉTRICO C=O	1690-1760	DÉBIL
C-OH EN PLANO FLEXIONADO	1440-1395	MEDIO
ALARGAMIENTO C-O	1080-1300	FUERTE

IV.2 ÍNDICE DE REFRACCIÓN

Cuando un haz de luz que se propaga por un medio e ingresa a otro distinto, una parte del haz se desvía mientras que la otra sufre una refracción, que consiste en el cambio de dirección del haz. Para esto se utiliza el llamado índice de refracción del material, que nos servirá para calcular la diferencia entre el ángulo de incidencia y el de refracción del haz (antes y después de ingresar al nuevo material).⁽⁹⁾

El efecto de la refracción se puede observar fácilmente introduciendo una varilla en el agua. Se puede ver que parece quebrarse bajo la superficie. En realidad lo que sucede es que la luz reflejada por la varilla (su imagen) cambia de dirección al salir del agua, debido a la diferencia de índices de refracción entre el agua y el aire (Figura 5).

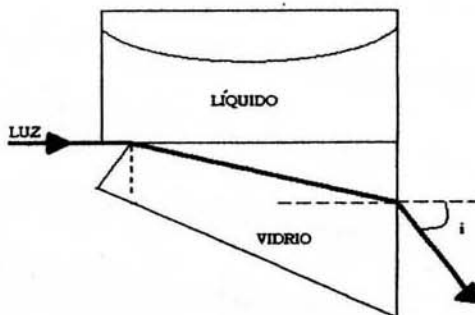


Figura 5. Ejemplo de refracción del agua

Se utiliza la letra n para representar el índice de refracción del material.

El índice de refracción de un líquido es una propiedad física importante que se emplea frecuentemente como una prueba de pureza, se determina mediante un instrumento denominado refractómetro. El tipo Pulfrich es conveniente y capaz de presentar resultados precisos con poca pérdida de tiempo. El líquido se coloca en una cubeta de vidrio cilíndrica asentada sobre un prisma recto fabricado con vidrio de índice de refracción elevado, generalmente 1.6. El refractómetro de Pulfrich permite la medida del ángulo "i" y si se conoce el índice de refracción del prisma se podrá calcular el del líquido. Con el instrumento se suministran tablas para diversos valores de "i" con lo cual se puede leer directamente el índice de refracción n para el ángulo medido.

Dado que la velocidad de la luz en cualquier medio es siempre menor que en el vacío, el índice de refracción de una sustancia será un número mayor que 1.

IV.3 VISCOSIMETRÍA

Los líquidos al igual que los gases muestran la resistencia a fluir que se conoce como viscosidad; en general, ésta es la propiedad que se opone al movimiento relativo de porciones adyacentes del líquido y se puede considerar, por consiguiente, como un tipo de rozamiento interno.⁽¹⁴⁾ Como en los gases, el coeficiente de viscosidad η se define como la fuerza por unidad de superficie (dinas por cm^2), necesaria para mantener la unidad de velocidad de diferencia, esto es, 1 cm por segundo, entre dos capas paralelas separadas 1 cm.

Los líquidos que tienen coeficientes bajos de viscosidad se dice que son móviles ya que fluyen fácilmente; por otro lado, cuando ésta es elevada el líquido es viscoso y no fluye con facilidad.

Cuando un líquido fluye a través de un tubo estrecho es probable que la capa fina del líquido en contacto con las paredes sea estacionaria; por tanto, como consecuencia de la viscosidad la capa siguiente se frenará en parte, y este efecto continuará disminuyendo cada vez más hasta el centro del tubo.

La medida directa de la viscosidad exige la determinación de la velocidad de flujo del líquido a través de un tubo capilar con dimensiones conocidas. De esta manera se han estudiado líquidos, pero como el trabajo experimental es lento se puede hacer uso de métodos relativamente sencillos, con los cuales resultan comparables las viscosidades de los líquidos: si se conoce el coeficiente de uno de ellos se puede determinar el del otro.

El método empleado comúnmente utiliza un instrumento denominado viscosímetro, del cual se pueden utilizar varios tipos. El principio empleado se puede comprender fácilmente en la Figura 6, que representa un viscosímetro sencillo; éste consiste esencialmente en una ampolla **A** con una maraca arriba (**x**) y otra abajo (**y**), unida a un tubo capilar **B** y a una ampolla depósito **C**. Se observa el tiempo t que tarde el líquido en fluir entre las señales **x** e **y**.⁽¹⁴⁾

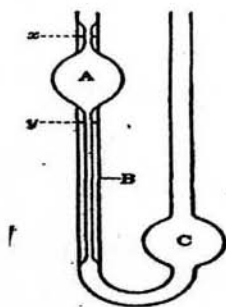


Figura 6. Instrumento capilar para medir la viscosidad

IV.4 CONTRACCIÓN Y ENCOGIMIENTO POR POLIMERIZACIÓN DE LA RESINA

El material que polimeriza se contrae, lo que genera tensiones internas, causando sensibilidad y dolor a la masticación, sobre todo en restauraciones extensas⁽³⁾. Debido a esto, la contracción por la polimerización de los materiales dentales a base de resinas, ha sido objeto de numerosos estudios y revisiones. Este interés proviene de percibir los problemas clínicos, que pueden suceder por grandes valores de fuerzas de contracción, durante la aplicación de restauraciones directas en cavidades dentales.

A lo largo de la polimerización, las moléculas de monómero que hasta ese momento permanecían equidistantes a 4 nm (distancia de Van der Waals) se redistribuyen en el espacio. Después de la polimerización, estas distancias quedan reducidas a las del enlace covalente, es decir tres veces menor. Esta disminución de la distancia interatómica traduce una contracción que será tanto mayor cuanto mayor sea el volumen de resina. La contracción de los composites híbridos es menor que las demás categorías debido a la distribución molecular del relleno.

Una contracción importante determina la aparición de fracturas cohesivas en el seno del material, la formación de fisuras marginales, la alteración del enlace matriz/relleno y la disminución de la resistencia del material.

Watts y Cash ⁽¹⁸⁾ han desarrollado un método para medir el encogimiento por medio de un transductor de desplazamiento que es un instrumento que elimina los problemas de acceso de la fuente de luz hacia la muestra, y que por medio de la corriente eléctrica mide la contracción para resinas fotopolimerizables.

La corriente eléctrica se define como el flujo de electrones provocado por una diferencia de potencial que se desplaza a lo largo de un conductor. Según la forma de moverse las cargas eléctricas por el conductor la corriente puede ser: directa o continua y alterna. La primera sucede cuando los electrones circulan siempre en el mismo sentido. La segunda es aquella cuyo sentido varía periódicamente y sus variaciones siguen generalmente una ley sinusoidal.

El instrumento para registrar las variaciones de la corriente o de la tensión eléctrica (que denominaremos a partir de este momento, como voltaje), en función del tiempo, es el osciloscopio el cual presenta el siguiente gráfico (Figura 7).

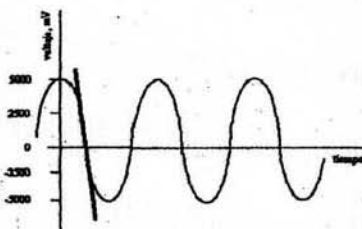


Figura 7. Representación gráfica de una senoide (corriente alterna)

Debido a que casi siempre es posible convertir una magnitud física en una señal eléctrica, la utilidad de este comportamiento es enorme. Para este estudio se aprovecha este comportamiento (variación de una señal eléctrica: voltaje) para medir la contracción por polimerización (magnitud física) que experimenta cualquier resina al fotopolimerizarse.

El transductor sirve para reproducir las medidas de encogimiento que sufren los materiales poliméricos debido a la contracción. Este método ha medido los valores de contracción lineal que se observan entre 0.2 y 1.9 % y de contracción volumétrica entre 1.5 y 4.2 %.

Las resinas tienen la propiedad de adherirse al vidrio; esta propiedad permite medir la fuerza de contracción. La polimerización de la resina hace que el cubreobjetos se flexione hacia abajo por acción del encogimiento debido a la adhesión de ésta con el vidrio. Esta flexión se detecta con el transductor LVDT durante todo el tiempo que dura la prueba. Se hacen lecturas de flexión a cada segundo. El transductor se conecta al sistema de adquisición de datos. Como se muestra en la Figura 8.

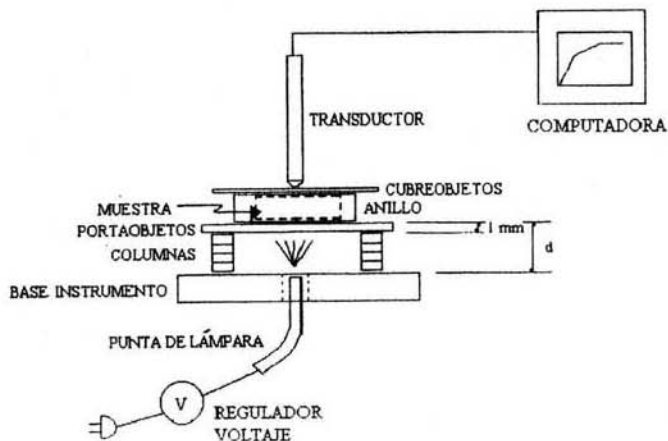


Figura 8. Diagrama esquemático del instrumento de medición de contracción

La Figura 9 presenta el gráfico que se obtiene.

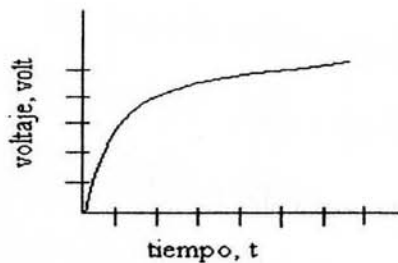


Figura 9. Gráfica voltaje de transductor vs tiempo

El encogimiento está definido como la relación entre el cambio de dimensiones de la muestra ($\Delta L = L_0 - L_t$) y la longitud inicial; donde L_t es la longitud que ha disminuido la muestra medida a un tiempo "t" (L_t), y está relacionado con el voltaje de salida del transductor (V_t) al tiempo "t" y con el factor de calibración K, mediante la ecuación $L_t = V_t/K$. El cambio de dimensiones ΔL se divide entre la longitud inicial, L_0 , para obtener la deformación de la muestra al tiempo "t" que al multiplicarse por 100 proporciona el porcentaje de encogimiento, S, representado mediante la ecuación: $S = 100 \Delta L/L_0$. La Figura 10 representa el comportamiento típico del encogimiento-tiempo de un material que se fotopolimeriza.

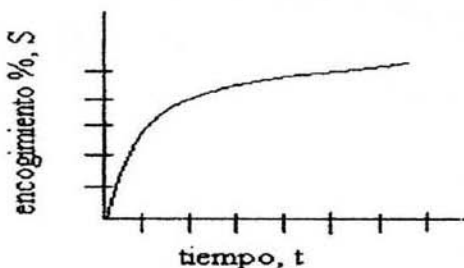


Figura 10. Gráfica encogimiento vs tiempo.

V. DISEÑO EXPERIMENTAL

V.1 DESARROLLO EXPERIMENTAL

PLANTEAMIENTO DEL PROBLEMA

El Laboratorio de Materiales Dentales de la DEPEL de la FO tiene el interés de conocer el comportamiento de las resinas compuestas, con la finalidad de desarrollar productos dentales a base de trietilenglicol mezclado con BisGMA. Este comportamiento no se puede estudiar usando resinas dentales comerciales porque en la mayoría de los casos los fabricantes no proporcionan los componentes y mucho menos sus cantidades debido a que son secretos industriales.

Uno de los componentes orgánicos de las resinas dentales es el BisGMA que tiene una alta viscosidad y por ende, es difícil de manipular. Para disminuir su viscosidad se mezcla con TEGDMA (trietilenglicoldimetacrilato). En el laboratorio ya se sintetiza BisGMA y se obtienen los materiales de relleno, falta obtener el trietilenglicoldimetacrilato, para llevar a cabo los estudios de investigación.

JUSTIFICACIÓN DEL ESTUDIO

Se ha desarrollado la molécula del BisGMA en el laboratorio, se pretende continuar con esta línea de investigación que permita preparar materiales con aplicaciones odontológicas a base de moléculas diacrílicas. El TEGDMA es un constituyente de estas, por lo que es necesario producirlo.

Lograr desarrollar la tecnología de síntesis del Trietilenglicoldimetacrilato permitirá producir los compuestos necesarios para aumentar el tamaño de muestras y hacer estudios variando la cantidad de partículas inorgánicas, iniciadores y aceleradores. De esta forma se logrará cubrir los requisitos solicitados por las normas de calidad, además de entender los fenómenos físicos y químicos que suceden al momento de transformar la resina en un polímero.

HIPÓTESIS

Mediante la reacción de transesterificación del metilmetacrilato con el trietilenglicol se obtendrá el TEGDMA.

OBJETIVOS

OBJETIVO GENERAL

1. Desarrollar la molécula del trietilenglicoldimetacrilato (TEGDMA).

OBJETIVOS ESPECÍFICOS

- a) Sintetizar el TEGDMA a través de un método químico, conocido como transesterificación.
- b) Caracterizar el TEGDMA experimental y comercial.

TIPO DE ESTUDIO

Experimental

DEFINICIÓN DE VARIABLES

VARIABLES INDEPENDIENTES

- Pureza de los reactivos
- Temperatura necesaria para llevar a cabo la síntesis de TEGDMA
- Cantidad de reactivos en gramos
- Presión atmosférica
- Atmósfera de gas inerte (nitrógeno)
- Cantidad del flujo de nitrógeno
- Velocidad de agitación
- Humedad ambiental
- Temperatura de destilación del agua de enfriamiento

VARIABLES DEPENDIENTES

- Pureza del TEGDMA sintetizado
- Color del TEGDMA sintetizado
- Viscosidad del TEGDMA sintetizado
- Índice de refracción del TEGDMA sintetizado
- Espectro infrarrojo del TEGDMA sintetizado
- Encogimiento del TEGDMA sintetizado

VI. 2 METODOLOGÍA

SÍNTESIS Y PURIFICACIÓN DE TRIETILENGLICOL DE DIMETACRILATO

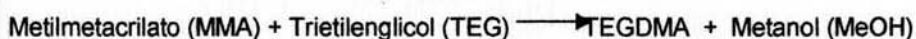
MATERIAL Y EQUIPO A EMPLEAR

1. Agitador magnético (SCIENCEWARE, F37120-0010, 1992, USA.)
 2. Reactor de vidrio de 1 boca de 250 ml (PYREX)
 3. Termómetro de -20°C a 150°C . (BRANNAN)
 4. Condensador de serpentín para destilación (PYREX)
 5. Gato de tijera (KIMAX)
 6. Soportes con pinzas de tres dedos
 7. Balanza analítica (OHAUS, GA200, 1989, GERMANY)
- a) Aceite para calentar

REACTIVOS

1. Metilmetacrilato grado reactivo (FLUKA) 99 %
2. Trietilenglicol grado reactivo (J.T.BAKER) 97 %
3. Hidroquinona grado reactivo (J.T.BAKER) 99%
4. Ácido sulfúrico grado reactivo (J.T.BAKER) 95 %
5. Sulfato de magnesio (J.T. BAKER) 99 %
6. Hidróxido de sodio (J.T. BAKER) 25 %

La síntesis del trietilenglicol de dimetacrilato obedece la siguiente reacción química:



A partir de ella se realizan cálculos estequiométricos para obtener el valor molar de cada reactivo.

Posteriormente se calcula la cantidad de catalizador (ácido sulfúrico), que corresponde al 2 % del peso total del TEG utilizado en la reacción. De igual forma se obtiene la cantidad de inhibidor que se requiere para llevar a cabo la reacción, en este caso se utiliza un compuesto orgánico, conocido como hidroquinona, y corresponde al 1 % del peso total del MMA.

Esta mezcla se coloca en un reactor de cristal con una columna de destilación. Los compuestos son calentados durante un periodo de 5 a 6 horas a una temperatura entre 90 y 100° C y con un vacío de 100 mm Hg que se disminuye durante el proceso de la reacción hasta llegar a 5 mm Hg.

Para purificar el TEGDMA, se usa una disolución acuosa de hidróxido de sodio (NaOH) al 25%, la cual se añade al TEGDMA manteniendo la mezcla entre 0 y 5° C con una velocidad de mezclado, de 50 r.p.m. Para calcular la cantidad de NaOH requerida, se pesa el TEGDMA y se añade el 25% del peso total del TEGDMA.

El tiempo requerido para llevar a cabo la adición de sosa al producto, es de 30 minutos a 1 hora, posteriormente se deja reposar durante un tiempo similar.

Se forman dos capas, una inferior que contiene metilmetacrilato sin reaccionar, catalizador, inhibidor y otros contaminantes. Una superior que contiene el TEGDMA, a la que más tarde se le añade sulfato de magnesio como agente deshidratante.

La cantidad requerida de sulfato de magnesio es del 5% del peso del producto purificado, al cual se le agrega y se agita durante 15 minutos.

CARACTERIZACIÓN

IDENTIFICACIÓN DEL TEGDMA POR ESPECTROSCOPÍA DE INFRARROJO

Una vez obtenido el producto purificado, se coloca una pequeña porción en el espectrofotómetro de análisis infrarrojo (Nicolet 5DRx) y se realiza la medición.

Se obtiene la "huella digital" del TEGDMA a través del espectro IR.

MEDICIÓN DEL ÍNDICE DE REFRACCIÓN

Se toma una pequeña porción del producto purificado que se coloca en el refractómetro (Fisher Scientific C. O., 13-964,1996, U.S.) y se realiza la medición del índice de refracción. Se hacen cinco lecturas a la misma temperatura para obtener un valor promedio.

MEDICIÓN DE LA VISCOSIDAD

Se coloca el material en el viscosímetro y se mide el tiempo que tarda en desplazarse de una marca a otra. Se hacen cinco mediciones a la misma temperatura para obtener un valor promedio.

CÁLCULO DEL ENCOGIMIENTO DE UNA MEZCLA DE BisGMA, TEGDMA Y SiO₂ SILANIZADO

Materiales:

1. Agitador magnético (SCIENCEWARE, F37120-0010, 1992, USA.)
2. Balanza analítica (OHAUS, GA200, 1989, GERMANY)
3. Espátula para cementos (3M)

Reactivos

1. TEGDMA
2. BisGMA (experimental)
3. N,N-dimetil-p-toluidina (J.T. BAKER), 98% (DMPT)
4. Camforquinona (ALDRICH), 99% (CPQ)

Se mezclan 13 g de BisGMA con 7 g de TEGDMA, 0.1 g de DMPT y 0.02 g de CPQ.

De esta mezcla se tomaron cantidades conocidas para mezclarse con SiO₂ en diferentes porcentajes y que se denominaron como material compuesto o resina compuesta.

Se pesan de 0.14 g a 0.15 g del material compuesto y se colocan en un portaobjetos que se encuentra sobre el instrumento de medición de contracción (Figura 11) y se fotopolimeriza durante 20 s.

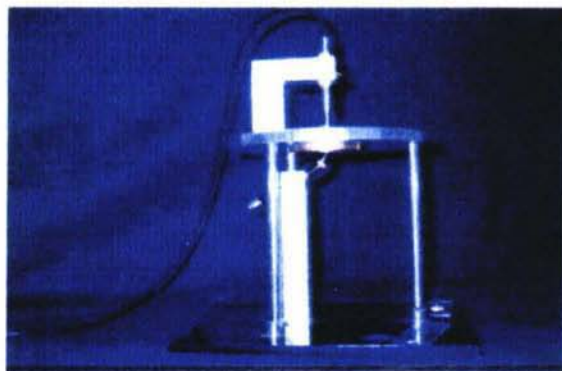


Figura 11. Instrumento típico para medición de contracción

El experimento dura 600 s y se capturan las lecturas de diferencia de voltaje, los cuales son transformados a valores de contracción.

Estos valores de contracción se usan para calcular el encogimiento (S) del compuesto mediante la siguiente expresión matemática.

$$\%S = \frac{100 \Delta L}{L_0}$$

Donde:

ΔL = contracción
 L_0 = longitud inicial

Se hicieron siete cálculos para reportar los valores promedio.

Todo el desarrollo experimental se hizo para el TEGDMA sintetizado en el laboratorio, así como para el TEGDMA comercial (ALDRICH, 95%)

VII. RESULTADOS EXPERIMENTALES

SÍNTESIS DE TRIETILENGLICOL DE DIMETACRILATO

Se realizaron reacciones de transesterificación del MMA y esterificación del AMA (Ácido metacrílico, Aldrich, 99 %)

Inicialmente, se llevaron a cabo reacciones para encontrar las condiciones de presión y temperatura para obtener el TEGDMA. Se partió de agregar al reactor 81 g de MMA, 31g de TEG, 0.6 g de H_2SO_4 y 0.8 g de HQ, mezclándolos en una atmósfera de gas nitrógeno.

Se observó que era necesario disminuir la presión dentro del reactor, pues se obtenía un polímero de MMA y TEG en lugar de TEGDMA

Se logró sintetizar TEGDMA cuando se trabajó con un vacío de 100 mm Hg pero con bajo rendimiento.

Para aumentar este rendimiento se mantuvo la misma cantidad de MMA y se incrementó al doble el resto de los reactivos. Se hizo reaccionar a éstos bajo las mismas condiciones de presión y temperatura. Se obtuvo mayor cantidad de TEGDMA.

La reacción de esterificación del AMA bajo las mismas condiciones que la transesterificación del MMA, dieron como resultado un polímero de AMA y TEG.

IDENTIFICACIÓN DEL TEGDMA POR ESPECTROSCOPIA INFRARROJA

Una vez purificado el TEGDMA, se obtuvo el IR. En la Figura 12 se observan varios picos algunos muy intensos y otros no. Cada pico representa un grupo funcional o característico.

El espectro muestra picos bien definidos del C-O (proviene del MMA: 1080-1300 cm^{-1}), C=O (proviene del MMA: 1690-1760 cm^{-1}) y -OH (proviene del TEG: 3610-3640 cm^{-1}). Los valores del intervalo de frecuencia se obtuvieron de la Tabla 1.

Cuando se analizó el TEGDMA comercial (Figura 13) se observaron los mismos picos característicos del C-O y del C=O, menos el del grupo -OH.

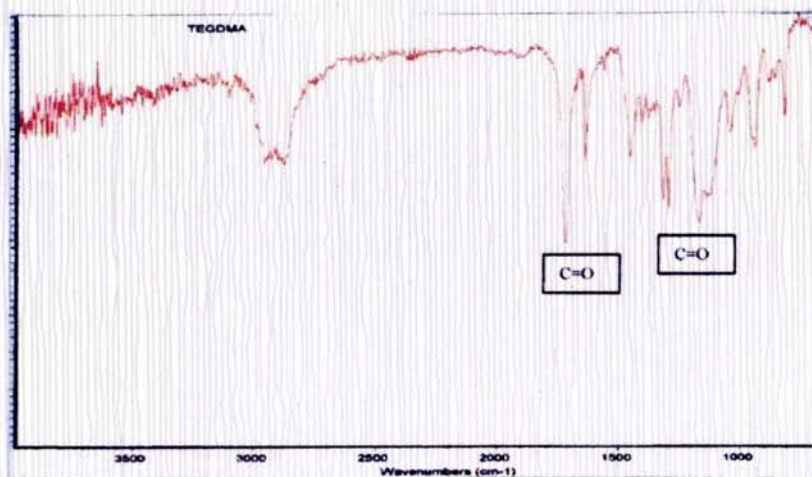


Figura 12. IR del TEGDMA comercial.

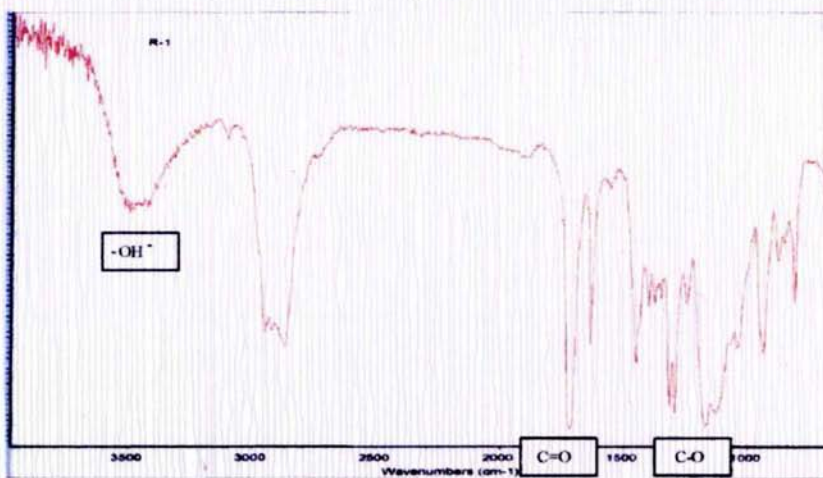


Figura 13. IR del TEGDMA sintetizado.

OBTENCIÓN DEL ÍNDICE DE REFRACCIÓN

La Tabla 2 presenta los resultados de la medición del índice de refracción de las reacciones de transesterificación así como del TEGDMA comercial.

Tabla 2. Resultados de índice de refracción de TEGDMA experimental y comercial.

Líquido	Índice de refracción
Experimental 1	1.430
Experimental 2	1.435
Experimental 4	1.435
Experimental 5	1.436
Experimental 6	1.429
Comercial	1.460

MEDICIÓN DE VISCOSIDAD

La Tabla 3 presenta los resultados de la medición de la viscosidad de las reacciones de transesterificación y del TEGDMA comercial.

Tabla 3. Resultados de viscosidad de TEGDMA experimental y comercial

Líquido	Viscosidad, s
Comercial	28.55
Experimental 1	18.71
Experimental 2	22.5
Experimental 4	19.5
Experimental 5	18.55

CÁLCULO DEL ENCOGIMIENTO DE UNA MEZCLA DE BisGMA/TEGDMA y SiO₂ SILANIZADO.

Variando la cantidad de SiO₂ silanizado se realizaron pruebas de contracción (10%, 30% y 60%) con el TEGDMA comercial y el sintetizado. La Figura 14 muestra el comportamiento del compuesto a las distintas concentraciones del dióxido de silicio silanizado usando el líquido experimental. La Tabla 4 presenta los valores promedio del encogimiento obtenidos a partir de

las mediciones de contracción usando los líquidos experimentales de las reacciones de transesterificación y del TEGDMA comercial.

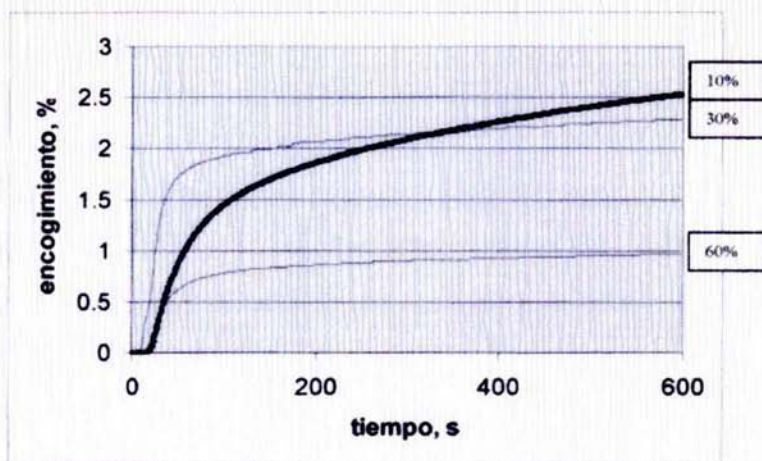


Figura 14. Comportamiento del encogimiento a las distintas concentraciones del dióxido de silicio silanizado.

Tabla 4. Resultados de encogimiento de TEGDMA experimental y comercial

SiO ₂	Encogimiento	
	Experimental	Comercial
%		%
10	2.61 ± 0.72	4.31±0.12
30	2.12 ± 0.67	4.32±0.18
60	0.96 ± 0.13	3.36 ±0.19

VII. DISCUSIÓN

SÍNTESIS DE TRIETILENGLICOL DIMETACRILATO

Las condiciones de presión y temperatura son vitales para la obtención de TEGDMA puro, ya que al exceder la segunda solo se obtuvo un polímero de MMA con TEG, por otro lado, al aumentar la presión, la reacción era reversible.

Fue trascendente conocer el comportamiento de la reacción, ya que al alterar en lo mínimo la presión y la temperatura, se obtenía un producto menos puro.

Al seguir la relación molar de la patente para la síntesis del TEGDMA, se observó una reacción reversible, esto debido al exceso del MMA, por lo tanto, se realizó un cambio de cantidades de cada reactivo, a excepción del MMA, logrando un mayor rendimiento y control de la reacción.

La purificación fue uno de los pasos más importantes, debido a que si no se realizaba adecuadamente, el producto se alteraba o la reacción se tornaba reversible. Para ello se llevaron a cabo distintas pruebas que dieron la pauta para mantener una refrigeración y agitación constante, dando como resultado un aumento notable en el rendimiento y pureza del producto.

Una vez controlados los factores anteriores se obtuvo un TEGDMA más puro.

IDENTIFICACIÓN DEL MONÓMERO POR ESPECTROSCOPIA

La figura 13 muestra el espectro del TEGDMA experimental. Se aprecian las bandas características de los diacrilatos (C-O, $1080-1300\text{cm}^{-1}$, C=O, $1690-1760\text{cm}^{-1}$). Al compararlo con el TEGDMA comercial (figura 12) se observaron las mismas bandas lo que indica que se obtuvo el producto deseado. Para asegurar que se ha llegado a sintetizar el TEGDMA, se recurrió a otros aspectos de caracterización que lo corroboran.

En la Figura 13 se observa en la región entre 3500 y 3000cm^{-1} que hay un pico ancho que corresponde al grupo funcional OH del TEG. Esto indica que existe una impureza dentro del TEGDMA sintetizado.

ESTA TESIS NO SALE DE LA BIBLIOTECA

ÍNDICE DE REFRACCIÓN

Debido a que se encontró un exceso de TEG sin reaccionar en el TEGDMA sintetizado, la densidad del producto se alteró, produciendo un índice de refracción distinto, al del comercial, por lo tanto, el índice de refracción osciló entre 1.429 y 1.436 mientras el dimetacrilato comercial presentó un valor de 1.460.

CÁLCULO DEL ENCOGIMIENTO

Las impurezas de cualquier monómero reaccionan con el resto de los componentes del compuesto dental, en éste caso el exceso de TEG en el dimetacrilato obtenido provocó un menor grado de encogimiento que el comercial en las tres concentraciones de óxido de silicio.

La disminución de la contracción al ser polimerizado, puede evitar un mayor esfuerzo en el órgano dentario, disminuye la hipersensibilidad postoperatoria y aumenta la posibilidad de minimizar la presencia de microfiltraciones. Esto representa un beneficio adicional en la creación del monómero dental, sin embargo, se requieren mayores estudios para corroborar que el dimetacrilato sigue cumpliendo la Norma 27 de la ADA.

VIII. CONCLUSIONES

La hipótesis se cumple, ya que se obtuvo el monómero de TEGDMA a través de la reacción de transesterificación del metilmetacrilato con trietilenglicol.

La identificación por espectroscopía infrarroja revela que el TEGDMA sintetizado contiene cualitativamente los mismos grupos funcionales que el comercial, sin embargo, presentó un grupo funcional de más (-OH).

Al obtener los valores de las propiedades se notó una ligera discrepancia entre el TEGDMA comercial y el sintetizado, esto debido a impurezas que contiene el dimetacrilato.

Al realizar las pruebas de polimerización se observó que el TEGDMA sintetizado mantuvo un grado de encogimiento menor al del TEGDMA comercial, se cree que en cierta forma la impureza encontrada, correspondiente al grupo funcional -OH del trietilenglicol, ayuda a disminuir la contracción durante la polimerización

REFERENCIAS

1. Faith: Industrial Chemical, Wiley-Interscience, New York, 1997.
2. Françoise Roth: Los Composites, Ed. Masson, Barcelona, 1997.
3. Hecht, Reinhold. Radically curable urethane prepolymers and their use in dental materials, United States Patent Application, January 9, 2003: 112-125.
4. L.H. Sperling: Introduction to Physical Polymer Science, A Wiley-Interscience Publication, New York, 1998.
5. Materials and Technology: Petroleum Organic Chemicals, Longmanj. H. De Bussy, London, 1991.
6. W.R. Salaneck: Conjugated Polymers and Related Materials, Oxford Science Publications, New York, 1994.

7. Kenneth J. Anusavice: Ciencia de los Materiales Dentales, Ed. McGraw-Hill Interamericana, México, 1996.
8. Bernard : Utilización Clínica de los Materiales Dentales, Ed. Masson, Barcelona, 1996.
9. John R. Holum: Principios de Fisicoquímica Química Orgánica y Bioquímica, Ed. Limusa, México, 1997.
10. Charles E. Carraher: Introducción a la Química de los Polímeros, Ed Reverté, Barcelona, 1998.
11. E.G. Han Cock: Propylene and its industrial derivatives, Ernest Benn Limited, London, 1973.
12. Gh. Hubca, Gr. Prescu, Margarita Tomescu and M. Dmonie. The Polytechnic, Laboratory of Macromolecular Technology, Revue Roumaine de Chimie Calea Victoriei, no.149, Bucharest Romania February 10, 1981: 1184-1193.
13. Anguita Deprés, Rodríguez Miro et al. Procedimiento para la obtención del dimetacrilato de etilenglicol, Oficina Cubana de la Propiedad Industrial, Julio 24, 1986: 215-219.

14. Glasstone Samuel: Tratado de Química Física, Ed. Aguilar, Madrid, 1970.
15. Diccionario Enciclopédico Quillet, Ed. Grolier, Tomo XII, México, 1989.
16. N. Cothup: The handbook of IR an Renon Characteristics Frequencies of Organic Molecules, Academic Press, New York, 1991.
17. James E. Brandy: Química Básica Principios y Estructura, Ed. Limusa Wiley, México, 2001.
18. Carpio Morales Anel: Influencia de modificaciones de voltaje y distancia punta-resina, en los niveles de contracción, Universidad Nacional Autónoma de México, México, 2001.