

Desarrollo de Resinas Poliméricas con Propiedades Antimicrobianas para Aplicaciones en Odontología Restaurativa mediante Dopaje con Carvacrol y Geraniol

José Abraham González-López^a, Beatriz Elvira Reyes-Vielma^a, María Esther Treviño-Martínez^a.

^a Centro de Investigación en Química Aplicada (CIQA), Departamento de Química Macromolecular y Nanomateriales, Blvd. Enrique Reyna Herosillo No. 140 Saltillo, Coahuila México. C.P. 25294, esther.trevino@ciqa.edu.mx

Resumen: Las resinas poliméricas utilizadas para la restauración de estructuras dentales dañadas, además de la biocompatibilidad que les permite integrarse al tejido dental natural, deben poseer una combinación de propiedades mecánicas como alta resistencia a la compresión, estabilidad dimensional y baja contracción al polimerizar. En el presente trabajo se presentan los resultados obtenidos en el desarrollo de resinas poliméricas con propiedades antimicrobianas para la prevención de infecciones sin afectar negativamente la durabilidad de los tratamientos dentales. Se investigó la incorporación independiente de carvacrol y geraniol en formulaciones de monómeros metacrílicos (BisGMA/TEGDMA). Estos compuestos naturales fueron seleccionados por su capacidad para inhibir el crecimiento de bacterias comunes en el entorno bucal, como *Staphylococcus aureus* y *Streptococcus mutans*. Las resinas dopadas demostraron una significativa reducción en la viabilidad bacteriana; subrayando su potencial como materiales de restauración dental con propiedades antibacterianas. Se evaluaron la resistencia flexural y el módulo elástico, siguiendo metodologías basadas en normas internacionales, y no se observaron diferencias significativas entre los grupos experimentales y el control para concentraciones inferiores al 5% de carvacrol y al 2% de geraniol. Se observó una disminución en la tasa de polimerización; que fue atribuida a la presencia de grupos -OH en los compuestos naturales.

Introducción

Las infecciones postoperatorias son una de las principales causas de fracaso en los tratamientos dentales restaurativos, derivadas de la acumulación de placa bacteriana y la proliferación de microorganismos patógenos en los sitios de restauración.¹⁻³ Las resinas poliméricas utilizadas en odontología restaurativa requieren no solo propiedades mecánicas adecuadas, como resistencia a la mecánica y estabilidad dimensional, sino también la capacidad de prevenir infecciones, con el fin de mejorar la longevidad del tratamiento y la salud bucal del paciente.^{4,5}

En los últimos años, ha habido un creciente interés en el desarrollo de materiales dentales con propiedades antimicrobianas, que puedan inhibir el crecimiento de microorganismos sin comprometer las características estructurales de la resina.⁶⁻⁹ En este contexto, los aceites esenciales y sus componentes activos, como el carvacrol y el geraniol, han emergido como alternativas atractivas debido a sus propiedades antibacterianas de amplio espectro y su origen natural, que podría contribuir a una mejor aceptación por parte de

los pacientes. El carvacrol, un componente principal del aceite esencial de orégano, ha demostrado una potente actividad contra bacterias grampositivas y gramnegativas, mientras que el geraniol, presente en aceites esenciales como el de rosa y citronela, también posee efectos antimicrobianos y es conocido por su baja toxicidad, lo cual lo hace adecuado para aplicaciones biomédicas.¹⁰⁻¹³ El presente estudio se enfoca en el desarrollo de resinas poliméricas dopadas con carvacrol y geraniol, compuestos que han demostrado una destacada actividad antimicrobiana contra bacterias bucales como *Streptococcus mutans*. Estos compuestos fueron incorporados en matrices de monómeros metacrílicos (BisGMA/TEGDMA) con el objetivo de proporcionar propiedades antibacterianas sin afectar de manera significativa las propiedades mecánicas de las resinas, lo cual se evaluó mediante pruebas de resistencia flexural, módulo elástico, y cinética de polimerización. Los resultados obtenidos sugieren que las resinas desarrolladas podrían representar una innovación significativa en el campo de la

odontología restaurativa, proporcionando una herramienta adicional para combatir la incidencia de infecciones postoperatorias.

Parte experimental.

Materiales. Todos los reactivos utilizados en este estudio, incluyendo los monómeros metacrílicos BisGMA y TEGDMA, así como los compuestos carvacrol y geraniol, fueron adquiridos de Sigma-Aldrich y se utilizaron directamente del envase sin necesidad de purificación adicional.

Para la fabricación de las resinas experimentales y de control, se emplearon tres concentraciones distintas de carvacrol (2%, 4% y 6%) y tres concentraciones de geraniol (0.5%, 1% y 1.5%). La relación en peso entre BisGMA y TEGDMA se mantuvo constante en 70/30. Finalmente, se utilizó un 0.8% de canforquinona y un 1.6% de 4EDAB como sistema iniciador.

Instrumentación. La resistencia flexural de las resinas poliméricas se evaluó de acuerdo con la norma ISO 4049, utilizando probetas rectangulares (25 mm x 2 mm x 2 mm) que fueron sometidas a una carga en tres puntos hasta la fractura. Esta prueba permitió determinar la capacidad de las resinas para resistir fuerzas mecánicas aplicadas, lo cual es fundamental para asegurar la durabilidad de las restauraciones dentales bajo condiciones de carga masticatoria.

El módulo elástico de las resinas también fue determinado siguiendo la norma ISO 4049, utilizando los mismos especímenes y condiciones de prueba que para la resistencia flexural. El módulo elástico es una medida de la rigidez del material, y es un parámetro crucial para evaluar su capacidad de soportar deformaciones bajo carga.

La cinética de polimerización de las resinas dopadas se evaluó mediante espectroscopia infrarroja por transformada de Fourier (FTIR), monitoreando la conversión de los grupos metacrílicos durante el proceso de curado. Esta técnica permitió determinar la eficiencia de polimerización de las resinas y la influencia de los compuestos antimicrobianos en este proceso.

En este estudio, se fabricaron discos de material dental estandarizados y esterilizados para garantizar un contacto uniforme con bacterias y evitar la contaminación. *Streptococcus mutans* fue cultivado y ajustado a una concentración estándar antes de ser utilizado en el ensayo de contacto directo con los discos. Los especímenes fueron expuestos a la suspensión bacteriana y luego incubados en condiciones anaeróbicas para promover la adherencia bacteriana. Posteriormente, las bacterias adheridas fueron despegadas y contadas para cuantificar la carga bacteriana viable.

Resultados y discusión.

Los resultados de resistencia flexural muestran que la adición de carvacrol hasta una concentración del 4% no afecta negativamente las propiedades mecánicas de las resinas. De hecho, el grupo C2 y C4 presentan una resistencia flexural significativamente mayor en comparación con el grupo control geraniol, lo que sugiere que el carvacrol tiene un efecto estabilizador en la matriz polimérica. Sin embargo, al incrementar la concentración al 6%, la resistencia flexural disminuye, posiblemente debido a la interacción del carvacrol con la red polimérica, lo cual podría afectar la cohesión del material.^{14,15}

Por otro lado, las resinas dopadas con geraniol muestran una tendencia diferente. Aunque las concentraciones bajas de geraniol (0.5% y 1%) no afectaron significativamente la resistencia flexural en comparación con el grupo control, una concentración más alta (1.5%) condujo a una disminución considerable de esta propiedad mecánica. Esto sugiere que el geraniol, a mayores concentraciones, puede actuar como un plastificante que reduce la rigidez de la matriz polimérica, afectando negativamente la capacidad del material para resistir fuerzas mecánicas.^{14,15}

Los valores del módulo elástico indicaron que la adición de carvacrol resultó en un aumento significativo de la rigidez del material en comparación con el control geraniol. El grupo

"Control Carvacrol" y las resinas con concentraciones del 2% y 4% de carvacrol (C2 y C4) presentaron los mayores valores de módulo elástico, lo cual sugiere una mejora en la capacidad del material para resistir deformaciones bajo carga. Sin embargo, en el caso del grupo C6, el módulo elástico disminuyó ligeramente, lo cual podría estar relacionado con una saturación de la interacción entre el carvacrol y la matriz polimérica.¹⁶

Tabla 1. Resistencia flexural y módulo elástico de las resinas evaluadas

GRUPOS	Resistencia flexural	Módulo elástico
Control Geraniol	66.45(10.73) ^a	1105.29(117.83) ^a
Control Carvacrol	89.41(3.35) ^b	3147.21(248.44) ^c
G0.5	62.01(5.86) ^a	1133.98(169.92) ^a
G1	51.12(9.66) ^a	1296.40(140.66) ^b
G1.5	27.8(8.99) ^c	1216.89(187.45) ^a
C2	92.13(6.45) ^b	2908.86(201.81) ^d
C4	85.24(9.87) ^b	2784.46(114.41) ^e
C6	70.35(9.34) ^a	2733.98(90.88) ^e

Diferentes letras minúsculas significan deferencias significativas entre los grupos.

En cuanto a las resinas dopadas con geraniol, los resultados muestran que las concentraciones de 0.5% y 1% no afectaron significativamente el módulo elástico en comparación con el control geraniol, mientras que la concentración de 1.5% presentó un valor ligeramente inferior. Esto sugiere que el geraniol, a concentraciones mayores, podría interferir con la reticulación del polímero, reduciendo la rigidez del material.¹⁶

La cinética de polimerización de las resinas dopadas con carvacrol se presenta en la Figura 1. Los resultados muestran que la adición de carvacrol disminuye ligeramente la velocidad de polimerización en comparación con el grupo control. A medida que se incrementa la concentración de carvacrol (2%, 4%, 6%), se observa una disminución progresiva en la conversión de los grupos metacrílicos durante el proceso de curado, lo cual podría estar relacionado con la

interacción de los grupos funcionales del carvacrol con los radicales libres generados durante la reacción de polimerización. Esta disminución en la tasa de polimerización podría influir en la estabilidad y el rendimiento mecánico del material, aunque los valores finales de conversión fueron similares entre los grupos.^{17,18}

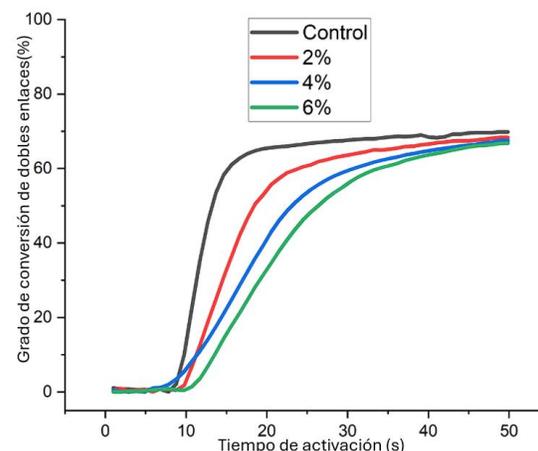


Figura 1. Cinética de polimerización de las resinas dopadas con carvacrol.

En la Tabla 2 se presentan los promedios de estrés por contracción de las resinas evaluadas.

Tabla 2. Estrés debido a la contracción para las resinas evaluadas

GRUPOS	Resistencia flexural
Control Geraniol	11.9(1.84) ^a
Control Carvacrol	13.4(1.14) ^b
G0.5	7.5(1.38) ^c
G1	6.9(1.67) ^c
G1.5	4.2(1.46) ^d
C2	9.8(1.48) ^e
C4	9.4(1.82) ^e
C6	6.2(0.84) ^d

Diferentes letras minúsculas significan deferencias significativas entre los grupos.

Los resultados indicaron que el grupo Control Carvacrol tuvo el mayor valor de estrés por contracción, seguido por el grupo Control

Geraniol. Las resinas con carvacrol al 2% y 4% también mostraron valores altos de estrés en comparación con las resinas dopadas con geraniol. No obstante, todos los grupos dopados con aceites esenciales presentaron un menor estrés que los controles, lo cual podría ayudar a reducir la tensión generada durante el curado y disminuir el riesgo de caries secundarias en las resinas dentales, mejorando así la durabilidad y la efectividad de las restauraciones. Esto podría contribuir significativamente a la calidad del tratamiento y a la satisfacción del paciente.¹⁹

Los resultados muestran una disminución significativa en la cantidad de unidades formadoras de colonias (UFC) para los grupos dopados con carvacrol y geraniol en comparación con sus respectivos controles. En general, las resinas dopadas con carvacrol presentan una mayor eficacia antimicrobiana que aquellas dopadas con geraniol, especialmente en las concentraciones más altas.

Para el grupo control carvacrol, la carga bacteriana fue sustancialmente mayor que en los grupos con concentraciones de 2%, 4%, y 6% de carvacrol, mostrando una clara reducción de UFC conforme aumentó la concentración del compuesto. El grupo con 6% de carvacrol resultó ser el más efectivo, con la menor cantidad de UFC.

En las resinas dopadas con geraniol, aunque se observó una disminución en las UFC con el aumento de la concentración, la tendencia no fue tan constante. Se registraron fluctuaciones en los valores, sugiriendo una eficacia antimicrobiana menos predecible en comparación con el carvacrol. Aunque los grupos G0.5, G1, y G1.5 presentaron una disminución en UFC en relación con el control, la variabilidad observada sugiere que el geraniol puede tener un comportamiento menos estable en la inhibición del crecimiento bacteriano.

Estos resultados sugieren que el carvacrol tiene un efecto más potente y consistente en la reducción de la carga microbiana, probablemente debido a su capacidad de desestabilizar las membranas celulares de las bacterias. Esto subraya el potencial del carvacrol como un agente antimicrobiano eficaz en aplicaciones de resinas dentales, contribuyendo significativamente a la

prevención de infecciones postoperatorias y mejorando la longevidad de los tratamientos restaurativos.¹⁰

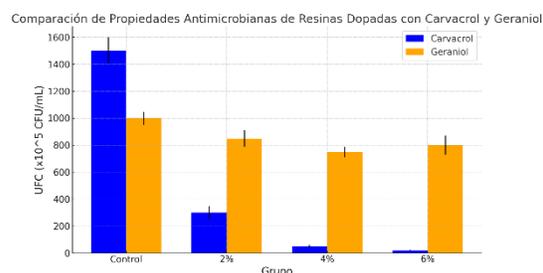


Figura 2. Propiedades antimicrobianas de las resinas evaluadas contra *S. Mutans*.

Conclusiones.

En este estudio, se desarrollaron resinas poliméricas dopadas con carvacrol y geraniol para aplicaciones en odontología restaurativa, con el objetivo de proporcionar propiedades antimicrobianas sin comprometer las características mecánicas del material. Los resultados demostraron que las resinas dopadas con carvacrol en concentraciones de hasta el 4% mantienen o mejoran la resistencia flexural y el módulo elástico, lo cual sugiere un efecto estabilizador del carvacrol en la matriz polimérica. Por otro lado, las resinas con geraniol presentaron una disminución en la resistencia flexural a concentraciones más altas, indicando un posible efecto plastificante.

La evaluación del estrés por contracción reveló que los grupos dopados con aceites esenciales presentaron un menor estrés en comparación con los grupos control, lo cual podría contribuir a reducir la tensión generada durante el curado y disminuir el riesgo de caries secundarias, mejorando la durabilidad de las restauraciones.

En conclusión, las resinas desarrolladas representan una prometedora alternativa para la odontología restaurativa, ofreciendo tanto resistencia mecánica como propiedades antimicrobianas, lo cual podría mejorar la calidad y duración del tratamiento.

Agradecimientos.

Los autores desean agradecer al Consejo Nacional de Humanidades, Ciencia y Tecnología (CONAHCYT) por su apoyo al otorgar la beca posdoctoral número 623158 al

Dr. José Abraham González López. Además, agradecemos a Beatriz Elvira Reyes Vielma y Maricela García Zamora por su invaluable apoyo técnico durante el desarrollo de este trabajo.

Referencias.

- (1) Brambilla, E.; Ionescu, A. C. Oral Biofilms and Secondary Caries Formation. In *Oral Biofilms and Modern Dental Materials*; Springer International Publishing: Cham, 2021; pp 19–35. https://doi.org/10.1007/978-3-030-67388-8_3.
- (2) Nedeljkovic, I.; De Munck, J.; Vanloy, A.; Declerck, D.; Lambrechts, P.; Peumans, M.; Teughels, W.; Van Meerbeek, B.; Van Landuyt, K. L. Secondary Caries: Prevalence, Characteristics, and Approach. *Clin Oral Investig* **2020**, *24* (2), 683–691. <https://doi.org/10.1007/s00784-019-02894-0>.
- (3) Askar, H.; Krois, J.; Göstemeyer, G.; Bottenberg, P.; Zero, D.; Banerjee, A.; Schwendicke, F. Secondary Caries: What Is It, and How It Can Be Controlled, Detected, and Managed? *Clin Oral Investig* **2020**, *24* (5), 1869–1876. <https://doi.org/10.1007/S00784-020-03268-7/TABLES/1>.
- (4) Fugolin, A. P.; Costa, A. R.; Kono, E.; Quirk, E.; Ferracane, J. L.; Pfeifer, C. S. Influence of the Organic Matrix Composition on the Polymerization Behavior and Bulk Properties of Resin Composites Containing Thiourethane-Functionalized Fillers. *Eur Polym J* **2020**, *130*, 109664. <https://doi.org/10.1016/J.EURPOLYMJ.2020.109664>.
- (5) Cho, K.; Rajan, G.; Farrar, P.; Prentice, L.; Prusty, B. G. Dental Resin Composites: A Review on Materials to Product Realizations. *Compos B Eng* **2022**, *230*, 109495. <https://doi.org/10.1016/J.COMPOSITE.SB.2021.109495>.
- (6) Ramburrun, P.; Pringle, N. A.; Dube, A.; Adam, R. Z.; D'souza, S.; Aucamp, M. Recent Advances in the Development of Antimicrobial and Antifouling Biocompatible Materials for Dental Applications. *Materials* **2021**, *Vol. 14*, Page 3167 **2021**, *14* (12), 3167. <https://doi.org/10.3390/MA14123167>.
- (7) D'ercole, S.; De Angelis, F.; Biferi, V.; Noviello, C.; Tripodi, D.; Di Lodovico, S.; Cellini, L.; D'arcangelo, C. Antibacterial and Antibiofilm Properties of Three Resin-Based Dental Composites against *Streptococcus Mutans*. *Materials* **2022**, *Vol. 15*, Page 1891 **2022**, *15* (5), 1891. <https://doi.org/10.3390/MA15051891>.
- (8) Featherstone, J. D. B. Dental Restorative Materials Containing Quaternary Ammonium Compounds Have Sustained Antibacterial Action. *The Journal of the American Dental Association* **2022**, *153* (12), 1114–1120. <https://doi.org/10.1016/J.ADAJ.2022.09.006>.
- (9) Fanfoni, L.; Marsich, E.; Turco, G.; Breschi, L.; Cadenaro, M. Development of Di-Methacrylate Quaternary Ammonium Monomers with Antibacterial Activity. *Acta Biomater* **2021**, *129*, 138–147. <https://doi.org/10.1016/J.ACTBIO.2021.05.012>.
- (10) Imran, M.; Aslam, M.; Alsagaby, S. A.; Saeed, F.; Ahmad, I.; Afzaal, M.; Arshad, M. U.; Abdelgawad, M. A.; El-Ghorab, A. H.; Khames, A.; Shariati, M. A.; Ahmad, A.; Hussain, M.; Imran, A.; Islam, S. Therapeutic Application of Carvacrol: A Comprehensive Review. *Food Sci Nutr* **2022**, *10* (11), 3544–3561. <https://doi.org/10.1002/FSN3.2994>.
- (11) Mauriello, E.; Ferrari, G.; Donsì, F. Effect of Formulation on Properties, Stability, Carvacrol Release and Antimicrobial Activity of Carvacrol Emulsions. *Colloids Surf B Biointerfaces* **2021**, *197*, 111424. <https://doi.org/10.1016/j.colsurfb.2020.111424>.
- (12) Bernal-Mercado, A. T.; Juarez, J.; Valdez, M. A.; Ayala-Zavala, J. F.; Del-Toro-Sánchez, C. L.; Encinas-Basurto, D. Hydrophobic Chitosan Nanoparticles Loaded with Carvacrol

- against *Pseudomonas Aeruginosa* Biofilms. *Molecules* **2022**, *27* (3), 699. <https://doi.org/10.3390/molecules27030699>.
- (13) Fernández-Babiano, I.; Navarro-Pérez, M. L.; Pérez-Giraldo, C.; Fernández-Calderón, M. C. Antibacterial and Antibiofilm Activity of Carvacrol against Oral Pathogenic Bacteria. *Metabolites* **2022**, *12* (12), 1255. <https://doi.org/10.3390/metabo12121255>.
- (14) Chung, S. M.; Yap, A. U. J.; Chandra, S. P.; Lim, C. T. Flexural Strength of Dental Composite Restoratives: Comparison of Biaxial and Three-point Bending Test. *J Biomed Mater Res B Appl Biomater* **2004**, *71B* (2), 278–283. <https://doi.org/10.1002/jbm.b.30103>.
- (15) Singer, L.; Bierbaum, G.; Kehl, K.; Bourauel, C. Evaluation of the Flexural Strength, Water Sorption, and Solubility of a Glass Ionomer Dental Cement Modified Using Phytomedicine. *Materials* **2020**, *13* (23), 5352. <https://doi.org/10.3390/ma13235352>.
- (16) Borges, A. L. S.; Dal Piva, A. M. de O.; Moecke, S. E.; de Moraes, R. C.; Tribst, J. P. M. Polymerization Shrinkage, Hygroscopic Expansion, Elastic Modulus and Degree of Conversion of Different Composites for Dental Application. *Journal of Composites Science* **2021**, *5* (12), 322. <https://doi.org/10.3390/jcs5120322>.
- (17) Ortiz, R. A.; López, D. P.; Cisneros, M. de L. G.; Valverde, J. C. R.; Crivello, J. V. A Kinetic Study of the Acceleration Effect of Substituted Benzyl Alcohols on the Cationic Photopolymerization Rate of Epoxidized Natural Oils. *Polymer (Guildf)* **2005**, *46* (5), 1535–1541. <https://doi.org/10.1016/j.polymer.2004.12.020>.
- (18) Szczesio-Wlodarczyk, A.; Kopacz, K.; Szyrkowska-Jozwik, M. I.; Sokolowski, J.; Bociong, K. An Evaluation of the Hydrolytic Stability of Selected Experimental Dental Matrices and Composites. *Materials* **2022**, *15* (14), 5055. <https://doi.org/10.3390/ma15145055>.
- (19) Meereis, C. T. W.; Münchow, E. A.; de Oliveira da Rosa, W. L.; da Silva, A. F.; Piva, E. Polymerization Shrinkage Stress of Resin-Based Dental Materials: A Systematic Review and Meta-Analyses of Composition Strategies. *J Mech Behav Biomed Mater* **2018**, *82*, 268–281. <https://doi.org/10.1016/j.jmbbm.2018.03.019>.