



安徽医科大学学报

Acta Universitatis Medicinalis Anhui

ISSN 1000-1492, CN 34-1065/R

《安徽医科大学学报》网络首发论文

题目： 仿生层状复合牙冠材料的构建及其生物相容性研究
作者： 阎默涵, 邹多宏
网络首发日期： 2026-05-13
引用格式： 阎默涵, 邹多宏. 仿生层状复合牙冠材料的构建及其生物相容性研究[J/OL]. 安徽医科大学学报. <https://link.cnki.net/urlid/34.1065.R.20260513.1124.004>



网络首发：在编辑部工作流程中，稿件从录用到出版要经历录用定稿、排版定稿、整期汇编定稿等阶段。录用定稿指内容已经确定，且通过同行评议、主编终审同意刊用的稿件。排版定稿指录用定稿按照期刊特定版式（包括网络呈现版式）排版后的稿件，可暂不确定出版年、卷、期和页码。整期汇编定稿指出版年、卷、期、页码均已确定的印刷或数字出版的整期汇编稿件。录用定稿网络首发稿件内容必须符合《出版管理条例》和《期刊出版管理规定》的有关规定；学术研究成果具有创新性、科学性和先进性，符合编辑部对刊文的录用要求，不存在学术不端行为及其他侵权行为；稿件内容应基本符合国家有关书刊编辑、出版的技术标准，正确使用和统一规范语言文字、符号、数字、外文字母、法定计量单位及地图标注等。为确保录用定稿网络首发的严肃性，录用定稿一经发布，不得修改论文题目、作者、机构名称和学术内容，只可基于编辑规范进行少量文字的修改。

出版确认：纸质期刊编辑部通过与《中国学术期刊（光盘版）》电子杂志社有限公司签约，在《中国学术期刊（网络版）》出版传播平台上创办与纸质期刊内容一致的网络版，以单篇或整期出版形式，在印刷出版之前刊发论文的录用定稿、排版定稿、整期汇编定稿。因为《中国学术期刊（网络版）》是国家新闻出版广电总局批准的网络连续型出版物（ISSN 2096-4188, CN 11-6037/Z），所以签约期刊的网络版上网络首发论文视为正式出版。

仿生层状复合牙冠材料的构建及其生物相容性研究

阎默涵¹, 邹多宏^{1,2}

(¹安徽医科大学口腔医学院, 安徽医科大学附属口腔医院, 安徽省口腔疾病研究重点实验室, 合肥 230032; ²上海交通大学口腔医学院, 上海交通大学医学院附属第九人民医院口腔
外科, 上海市口腔医学重点实验室, 上海 200001)

基金项目: 国家自然科学基金项目(编号: 32171347); 国家重点研发计划项目(编号: 2024YFC2418600);
上海市卫生健康委员会卫生健康学科带头人培养计划项目(编号: 2022XD038)

作者简介: 阎默涵, 男, 硕士研究生;

邹多宏, 男, 教授, 博士生导师, 通信作者, E-mail: zdhyy@ahmu.edu.cn

摘要 目的 通过制备 3 mol% 氧化钇稳定四方多晶氧化锆(3Y-TZP)-聚甲基丙烯酸甲酯(PMMA)仿生层状复合材料, 测试其力学性能、生物相容性, 研究其作为陶瓷牙冠的应用可能性。**方法** 使用扫描电子显微镜与金相显微镜观察 3Y-TZP 粉末的微观形貌。球磨后的 3Y-TZP 粉末与细菌纤维素一起搅拌得到均匀的陶瓷浆料, 通过流延成型得到均匀的陶瓷薄膜, 薄膜堆叠后, 再通过无压烧结, 硅烷化偶联, 有机物灌注, 最终得到复合材料。用扫描电子显微镜观察复合材料微观结构。采用力学万能试验机测定复合材料各项力学性能, 通过落球、落锤实验测试样品的能量耗散率及冲击韧性。通过 CCK-8、活死细胞染色、细胞黏附、细胞迁移实验探究复合材料的生物相容性。**结果** 复合材料呈清晰的层叠状结构, 随着陶瓷层厚度的减小, 材料的弯曲、压缩强度逐渐降低, 但是抗冲击性能大幅提高, 能量耗散率与冲击韧性最高可分别达到 75.8% 和 44.1 kJ/m²。空白组、材料组之间的 CCK-8、活死细胞染色、细胞迁移实验结果均无明显差异, 细胞能较好地黏附在复合材料上。**结论** 该研究成功制备了 3Y-TZP-PMMA 复合材料, 且其兼具十分优异的机械性能和生物相容性, 具有很好的临床应用前景。

关键词 3Y-TZP; 聚甲基丙烯酸甲酯; 流延成型; 层叠结构; 能量耗散; 陶瓷牙冠

中图分类号 R 783.1

Construction and biocompatibility study of biomimetic layered dental crown composites

Yan Mohan¹, Zou Duohong^{1,2}

¹*Stomatological College of Anhui Medical University, The Affiliated Stomatological Hospital of Anhui Medical University, Key Lab of Oral Diseases Research of Anhui Province, Hefei 230032;*

²*Stomatological College of Shanghai Jiao Tong University, Dept of Oral Surgery of Shanghai Jiao Tong University Affiliated Shanghai Ninth People's Hospital, Shanghai Key Laboratory of Stomatology, Shanghai 200001)*

Abstract Objective. , To evaluate the mechanical properties and biocompatibility of a 3 mol% yttria-stabilized tetragonal zirconia polycrystal (3Y-TZP)-polymethyl methacrylate (PMMA) biomimetic layered composite and to explore the feasibility of using this composite for ceramic dental crowns. **Methods** The micro-morphology of 3Y-TZP powder was observed using scanning electron microscopy and metallographic microscopy. The ball-milled 3Y-TZP powder was stirred together with bacterial cellulose to obtain a homogeneous ceramic slurry. Uniform ceramic films were prepared by tape casting. After stacking the ceramic films, the composite was finally obtained through pressure-less sintering, silane coupling, and organic matter infiltration. The microstructure of the composite was observed using scanning electron microscopy. The mechanical properties of the composite were measured using a universal testing machine, and the energy dissipation rate and impact toughness of the samples were evaluated through ball drop and falling weight impact tests. The biocompatibility of the composite was investigated using CCK-8 assay, live/dead cell staining, cell adhesion assay, and Transwell cell migration assay. **Results** The composite exhibited a distinct layered structure. As the thickness of the ceramic layer decreased, the bending and compressive strengths of the material gradually decreased, while its impact resistance was significantly improved. The maximum energy dissipation rate and impact toughness can reach 75.8% and 44.1 kJ/m² respectively. No significant differences were observed in the CCK-8 assay, live/dead cell staining, or cell migration assay results between the blank group and the material group, and cells were able to adhere well to the composite. **Conclusion** This study successfully fabricates 3Y-TZP-PMMA composite materials, which possess both

excellent mechanical properties and biocompatibility, demonstrating promising prospects for clinical application.

Key words 3Y-TZP; polymethyl methacrylate; tape casting; layered structure; dissipation of energy; ceramic dental crown

Fund programs National Natural Science Foundation of China (No. 32171347); National Key Research and Development Program of China (No. 2024YFC2418600); Health Discipline Leader Cultivation Program of Shanghai Municipal Health Commission (No. 2022XD038)

Corresponding author Zou Duohong, E-mail: zdhyy@ahmu.edu.cn

陶瓷牙冠凭借优异的美学性能与生物相容性在口腔修复领域得到广泛应用,但当前其临床应用仍存在诸多亟待解决的关键问题。从材料本征性能来看,陶瓷材料固有的高脆性导致其抗冲击韧性不足,在咬合力集中、夜磨牙或咬硬物等场景下易发生冠裂、崩瓷等失效现象^[1]。因此,如何提升陶瓷的韧性以及抗冲击性能引起了极大的关注。自然界中的生物进化出了许多精妙复杂的结构,这些结构的功能特性引起了研究者的极大兴趣,为材料的功能改性提供了启示^[2-3]。软体动物壳中的珍珠层是一种天然存在的陶瓷-聚合物复合材料,其中的文石片层与有机物层呈现层状排列紧密堆叠,与其成分相比,这种结构使珍珠层的断裂韧性有了显著提高^[4]。

由于生物材料优异的力学性能,仿生复合材料的设计和制备引起了广泛关注^[5]。因此,该研究通过堆叠陶瓷薄膜构建层状结构框架并灌注有机物,得到了具有宏观与微观尺度增韧机制相结合的仿生复合材料^[6-7]。仿生结构的精准构建可兼顾材料的生物安全性与组织亲和性,降低界面微裂隙产生风险,延长牙冠修复体的临床使用寿命,为开发兼具优异力学性能、生物相容性与临床适用性的新型牙冠修复材料提供了创新思路与技术支撑。

1 材料与方法

1.1 合成材料

3 mol% 氧化钇稳定四方多晶氧化锆 (3 mol% yttria-stabilized tetragonal zirconia polycrystal, 3Y-TZP) 粉末 (焦作众成新材料有限责任公司); 甲基丙烯酸甲酯、2,2-偶氮二

异丁腈(上海阿拉丁生化科技股份有限公司);细菌纤维素分散液(桂林奇宏科技有限公司)。

1.2 主要试剂与仪器

α -改良的Eagle最低必需培养基(alpha modification of Eagle's minimum essential medium, α -MEM)、胰酶消化液、青-链霉素溶液、活死细胞染色试剂盒(货号: C2767-500ml、C0203-100ml、C0222、C2015S,上海碧云天生物技术有限公司);胎牛血清(货号: A5256701,美国Gibco公司);CCK-8试剂(货号: CK04,日本DOJINDO化学研究所);98%浓硫酸、30%过氧化氢溶液、硅烷化偶联剂KH-570、乙醇溶液、叔丁醇(货号: 7664-93-9、7722-84-1、2530-85-0、64-17-5、75-65-0,国药集团化学试剂有限公司);4%多聚甲醛、0.1%结晶紫染色液、磷酸盐缓冲溶液(phosphate buffered saline, PBS)(货号: BL539A、BL802A、BL302A北京兰杰柯科技有限公司)。电子天平(型号: HZK-FA210S,德国赛多利斯公司);二氧化碳孵育箱(型号: FORMA3111,美国Thermo公司);酶标仪(型号: Infinite 200Pro M nona,瑞士Tecan公司);扫描电子显微镜(型号: SEM 3200,合肥国仪量子技术股份有限公司);高温高压灭菌锅[型号: GI29TW,致微(厦门)仪器有限公司];荧光显微镜(型号: DM600B,德国Leica公司);X射线衍射仪(型号: Rigaku SmartLab SE X,日本理学公司);金相显微镜(型号: YM710TR,安徽越视揭秘仪器有限公司);热重分析仪(型号: STA449F3,德国Netsch公司);万能试验机(型号: 34 TM-10,美国INSTRON公司);电动压片机(型号: DYP-40 TF,上海新诺仪器集团有限公司);真空吸附加热刮刀线棒一体式涂布试验机(型号: ZY-TB-X3,山东中仪仪器有限公司);行星球磨机(型号: YXQM,长沙米淇仪器设备有限公司);金刚石线切割机(型号: STX-202 A,沈阳科晶自动化设备有限公司)。

1.3 方法

1.3.1 陶瓷薄膜制备

将20 g的3Y-TZP粉末加入200 mL去离子水中,用玻璃棒搅拌均匀后倒入球磨罐中,加入6颗直径为2 cm的球磨珠,随后将球磨罐放入行星球磨机中,以200 r/min的转速球磨18 h。球磨结束后,将陶瓷粉末悬浮液倒入烧杯中,加入130 g的细菌纤维素,放置于机械搅拌台上以600 r/min的转速搅拌24 h即可得到均匀的陶瓷浆料。在涂布试验机表面铺一张聚酯薄膜,将浆料倒于聚酯薄膜上,调整刮刀高度调为2.5 mm,刮涂速度为5 mm/s,刮涂距离为450 mm,进行刮涂,控制蒸发温度40 °C,蒸发时间为6 h,待水分蒸发之后即可得到一张厚度约为110 μ m的薄膜。同理,分别调整刮刀高度为3.1 mm、3.7 mm,即可得到

厚度分别为 150 μm 、210 μm 的薄膜。将不同厚度的薄膜裁切成需要的大小，备用。

1.3.2 3Y-TZP 陶瓷框架制备

将流延成型得到的不同厚度的陶瓷薄膜放入压片机中压制(常温, 70 MPa), 保压 1 min, 随后将压制好的薄膜取出, 进行堆叠, 控制堆叠后的总厚度为 2.8 mm, 在堆叠后的样品上放置刚玉板进行压制, 随后放入箱式炉中烧结。另将陶瓷薄膜打碎成粉末, 放入方形模具中压制(常温, 70 MPa), 得到密实块体, 放入箱式炉中烧结。烧结完成后即可得到具有层间隙的陶瓷框架以及无层状结构的块状陶瓷。层状陶瓷框架的层厚分别为 50、75、100 μm 。

1.3.3 3Y-TZP-聚甲基丙烯酸甲酯 (polymethyl methacrylate, PMMA) 复合材料制备

配置食人鱼溶液(浓硫酸与 30% 过氧化氢溶液体积比 1:1), 将陶瓷框架浸入该溶液中, 经真空灌注处理 30 min 后, 持续浸泡 12 h, 取出后用去离子水反复冲洗至样品 pH 值呈中性, 备用。制备硅烷化偶联剂溶液(KH-570 硅烷偶联剂与无水乙醇溶液体积比 1:10), 将上述陶瓷框架置于该溶液中, 真空灌注 30 min 后浸泡 12 h, 随后烘干处理。配制 PMMA 预聚溶液(甲基丙烯酸甲酯与 2,2-偶氮二异丁腈质量比 1:0.005), 将硅烷化改性后的陶瓷框架浸入预聚溶液, 真空环境灌注 30 min; 随后将陶瓷框架与 PMMA 预聚溶液共同转移至离心管, 采用封口膜严密密封, 先置于 40 $^{\circ}\text{C}$ 恒温加热台反应 4 d, 再转移至 80 $^{\circ}\text{C}$ 烘箱中保温 12 h 完成聚合反应。采用金刚石线切割机将复合材料取出, 对所得复合材料进行逐级打磨抛光, 经去离子水超声清洗去除表面杂质后, 置于烘箱中烘干, 最终获得复合材料。随后将大块样品切割成若干 20 mm \times 20 mm \times 2 mm 的样品备用。

1.3.4 材料表征

金相显微镜(metallurgical microscope, MM)图像使用金相显微镜的暗场模式获得。扫描电子显微镜(scanning electron microscope, SEM)图像使用钨灯丝扫描电子显微镜以 7 kV 的加速度获得。热重分析数据使用热重分析仪在 30~800 $^{\circ}\text{C}$ 的温度及 10 $^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 的升温速度及 20 mL/min 的流速下获得。X 射线衍射(X-ray diffraction, XRD)数据使用 X 射线衍射仪获得。在电子天平上称重, 计算不同组别复合材料的密度(g/cm^3), 使用以下公式:

$$\rho = \frac{m_3 \rho_{\text{水}}}{m_1 - m_2}$$

其中 m_1 是充分吸水后样品在空气中的质量, m_2 是样品充分吸水后在水中的质量, m_3 是样品充分干燥后在空气中的质量, $\rho_{\text{水}}$ 实验中蒸馏水的密度 1 g/cm^3 。

1.3.5 力学测试

压缩试验数据通过万能试验机获得，力加载方向为垂直于层叠方向，速度为 1 mm/min。弯曲试验数据通过万能试验机获得，将样品切割为长 20 mm、宽 5 mm、厚 2 mm 的长方体，测试跨距为 20 mm，力加载方向为垂直于层叠方向，加载速度为 0.1 mm/min。

落球试验中，将样品切割成长 20 mm、宽 20 mm、厚 2 mm 的长方体，使用直径 0.8 mm，重量 2.1 g 钢球从距离样品 50 cm 处位置释放，使用摄像机记录钢球撞击样品后的回弹高度，根据回弹高度，计算能量耗散率（%），使用以下公式：

$$\text{能量耗散率} = \frac{h_0 - h_1}{h_0} \times 100\%$$

其中， h_0 表示钢球的释放高度， h_1 表示钢球首次与样品接触后的回弹高度。

落锤试验中，将样品切割成长 20 mm、宽 20 mm、厚 2 mm 的长方体，用直径 20 mm，重量 370 g 的半圆形锤头落锤垂直地撞击在样品表面，每次撞击后，均检查样本表面是否有裂纹或断裂。如果样品保持完好无损，则将释放高度逐步增加，然后重复测试，直至样品断裂。记录样品断裂时的高度，通过高度计算冲击韧性，使用以下公式：

$$\text{冲击韧性} = \frac{mgh}{LD}$$

其中， m 是落锤重量， g 是重力加速 9.8 m/s^2 ， h 是样品破坏时落锤重心的高度， L 是样品的长度， D 是样品的厚度。

1.3.6 复合材料细胞生物相容性实验

按照国际标准组织（ISO/EN10993-12）标准制备复合材料浸提液：将经高温高压灭菌处理的各组样品，按 1 g/10 mL 的料液比浸泡于含 10% 胎牛血清及 1% 青-链霉素双抗的 α -MEM。将 MC3T3-E1 细胞以 2.5×10^3 个/孔的密度接种于 96 孔板，每组每个时间点设置 5 个复孔。细胞接种 24 h 后更换培养基，对照组采用普通 α -MEM 培养基培养，实验组加入上述制备的对应样品浸提液，后续每 3 d 更换 1 次培养基。分别于培养 1、4、7 d 时，弃去各孔原有培养基，用 PBS 洗涤 2 次；按 CCK-8 试剂与 α -MEM 培养基 1 : 9 的体积比配制反应液，每孔加入 100 μL ，置于 37 $^\circ\text{C}$ 、5% CO_2 培养箱中孵育 2 h；采用酶标仪测定各孔在 450 nm 波长下的吸光度值，评估细胞增殖活性。

按照国际标准组织（ISO/EN10993-12）标准制备复合材料浸提液：将经高温高压灭菌

处理的各组样品，按 1 g/10 mL 的料液比浸泡于含 10%胎牛血清及 1%青-链霉素双抗的 α -MEM。在 6 孔板各孔中预先放置直径 24 mm 的细胞爬片，随后将 MC3T3-E1 细胞以 1×10^5 个/孔的密度接种于爬片上，每组每个时间点设置 2 个复孔。细胞贴壁 24 h 后更换培养基，对照组用普通 α -MEM 培养基，实验组加入对应样品浸提液，每 3 d 换液 1 次。培养至 1、4、7 d 时，弃去培养基，PBS 洗涤 2 次；按照活死细胞染色试剂盒说明书配制检测工作液（Calcein AM (1 000 \times) : PI (1 000 \times) : 检测缓冲液=1 : 1 : 1 000），每孔加入 1 mL 工作液，37 $^{\circ}$ C 避光孵育 30 min；弃去工作液，PBS 洗涤 3 次去除未结合染料，之后采用荧光显微镜观察。

将复合材料处理成直径 10 mm 的圆形样品，经高温高压灭菌后置于 24 孔板中，每组设置 3 个复孔；每孔接种 5×10^3 个 BMSC 细胞，置于培养箱中孵育 24 h。弃去孔内培养基，用 PBS 洗涤 3 次；加入 4%多聚甲醛溶液固定细胞 30 min，弃去固定液后再次用 PBS 洗涤 3 次；随后采用梯度乙醇脱水处理：依次用 50%、60%、70%、80%、90%、95%、100%乙醇溶液各浸泡样品 15 min，然后用叔丁醇浸洗样品 3 次以置换乙醇，弃去叔丁醇后放入真空冷冻干燥机中进行冷冻干燥，干燥完成后对样品表面进行喷金处理，采用扫描电子显微镜观察细胞在材料表面的黏附形态及铺展情况。

将复合材料加工为直径 6 mm 的圆形样品，高温高压灭菌后放入 24 孔板，每组设置 3 个复孔。取出 Transwell 小室（孔径 8 μ m），去除外包装后置于含基础培养基的 24 孔板孔中；向上室加入含 10%胎牛血清及 1%青-链霉素双抗的 α -MEM 培养基，同时接种 5×10^3 个 BMSC 细胞，后续每 3 d 更换 1 次培养基。分别于培养 1、4、7 d 时，弃去各孔培养基，用无菌镊子取出 Transwell 小室，置于无菌滤纸上沥干多余液体；用无菌棉签轻轻擦拭小室上室表面未迁移的细胞，将小室放入盛有 4%多聚甲醛溶液的培养皿中，室温固定 15~20 min；取出小室，用 PBS 轻轻冲洗上、下室表面 2 次，每次 5 min，以去除残留固定液；向下室表面（细胞迁移侧）滴加 0.1%结晶紫染色液，确保染色液完全覆盖膜表面，室温染色 20 min，染色结束后，用蒸馏水缓慢冲洗下室表面至冲洗液无色，将小室倒置在滤纸上晾干，采用倒置显微镜观察，评估材料对细胞迁移能力的影响。

1.4 统计学处理

本研究采用 GraphPad Prism 10.0 统计软件对实验数据进行统计学分析，所有数据均以 $\bar{x} \pm s$ 表示。组间数据比较采用相应的统计学检验方法：两组间比较采用独立样本 t 检验，多组间比较采用单因素方差分析，使用 Tukey HSD 法进行事后两两比较。 $P < 0.05$ 为差异有

统计学意义。

2 结果

2.1 材料表征

2.1.1 原材料

SEM 图像（图 1A）和 MM（图 1B）都显示出微米级别的 3Y-TZP 颗粒。

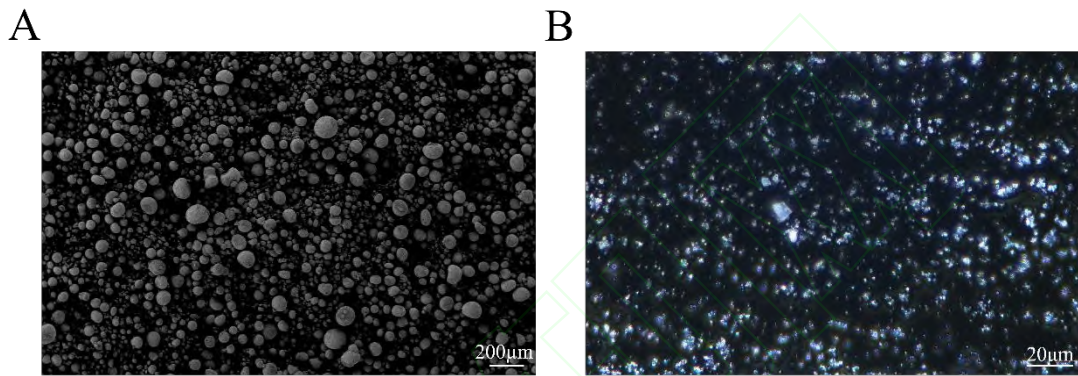


图 1 扫描电镜及金相显微镜下 3Y-TZP 粉末的微观表征

Fig. 1 Microscopic characterization of 3Y-TZP powder under scanning electron microscopy and metallographic microscope

注：A: 3Y-TZP powder×50; B: 3Y-TZP powder×20.

2.1.2 陶瓷薄膜与陶瓷框架表征

浆料流延成型且蒸发完成后，得到陶瓷膜，SEM 图像显示陶瓷膜截面（图 2AI），且压制后厚度减小，密实度增加（图 2AII）。通过热重分析数据结果（图 2B），计算出陶瓷膜有机物含量约为 6%。硅烷偶联剂可以通过分子双向反应构建无机相与有机相的界面化学键合，同时优化界面相容性，在未硅烷化偶联处理的样品直接灌注 PMMA，SEM 图像可以观察到白色箭头所指处有机相与陶瓷相的结合并不紧密，仍有缝隙（图 2CI）；而硅烷化偶联处理后再进行 PMMA 的灌注，可以观察到橙色箭头所指处有机相与陶瓷相之间连接紧密，无缝隙（图 2CII）。通过 XRD 测试结果可以看出在烧结过程后，无定形峰消失，仅出现四方相二氧化锆特征峰，氧化钇成功固溶进入二氧化锆晶格，稳定了四方相（图 2D）。在进行烧结程序后，SEM 图像显示陶瓷相内部结构致密，缺陷少，且成功构建了层厚分别为 50

μm (图 2E), $75 \mu\text{m}$ (图 2F), $100 \mu\text{m}$ (图 2G) 以及无层状结构 (图 2H) 的陶瓷框架。

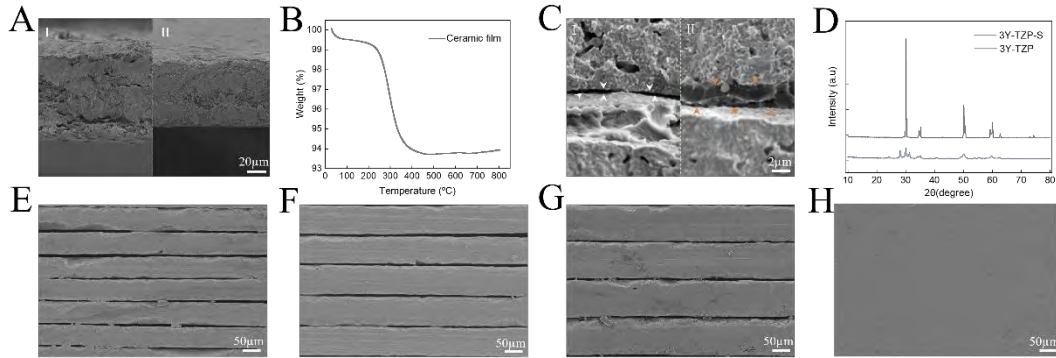


图 2 陶瓷膜及陶瓷框架的微观表征

Fig. 2 Microscopic characterization of ceramic film and ceramic frame

注: AI: Cross-section of unpressed ceramic film $\times 500$; AII: Cross-section of pressed ceramic film $\times 500$; B: TGA of ceramic film; CI: 3Y-TZP-PMMA Section (Unsilanated coupling) $\times 5000$; CII: 3Y-TZP-PMMA Section (Silane coupling) $\times 5000$; D: XRD of 3Y-TZP before and after sintering; E: Ceramic frame with a $50 \mu\text{m}$ layer thickness $\times 500$; F: Ceramic frame with a $75 \mu\text{m}$ layer thickness $\times 500$; G: Ceramic frame with a $100 \mu\text{m}$ layer thickness $\times 500$; H: Non-layered structure ceramic $\times 500$.

2.1.3 材料基本特性

陶瓷膜伴随烧结致密化过程会发生收缩现象,且三维方向收缩率无明显差异,呈现良好的各向同性收缩(图 3A)。复合材料随着陶瓷膜厚度的增加,层间数量相应减少,有机物占比逐渐降低,因此密度也逐渐增大(图 3B)。

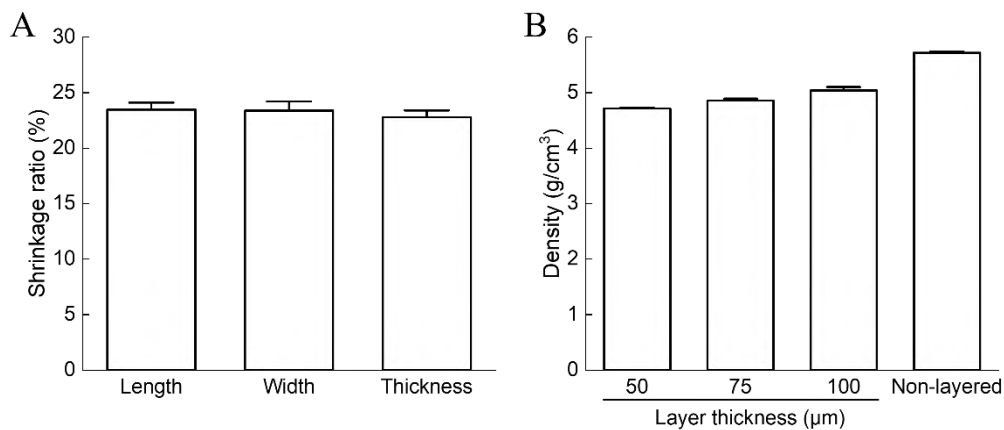


图 3 多层复合陶瓷材料的基本特性表征

Fig. 3 Basic characterization of multilayer composite ceramic material

A: 陶瓷膜不同方向的收缩率; B: 不同层厚复合材料的密度

注: A: Shrinkage ratio of ceramic film in different directions; B: Density of composite materials with different layer thickness.

2.2 力学性能

通过对复合材料进行准静态和动态力学测试,证实本研究中的仿生层状结构的作用。随着陶瓷层厚度的增加,复合材料的弯曲强度(图 4A)与压缩强度(图 4B)均增高,且均低于无层状结构的样品,这些测试结果都符合多层结构设计所应有的准静态力学表现。动态力学测试中,落球回弹试验表明,随着陶瓷层厚度的减少,能量耗散率显著增加,且均高于无层状结构组(图 4C)。50 μm 陶瓷层厚度的复合材料能量吸收率达到了 75.8%。落锤冲击试验所得到的结果与落球试验结果相似(图 4D),50 μm 陶瓷层厚度的复合材料冲击韧性达到约 44.1 kJ/m^2 。这些结果直接证明了层状复合材料在能量耗散与抗冲击方面的显著提升。

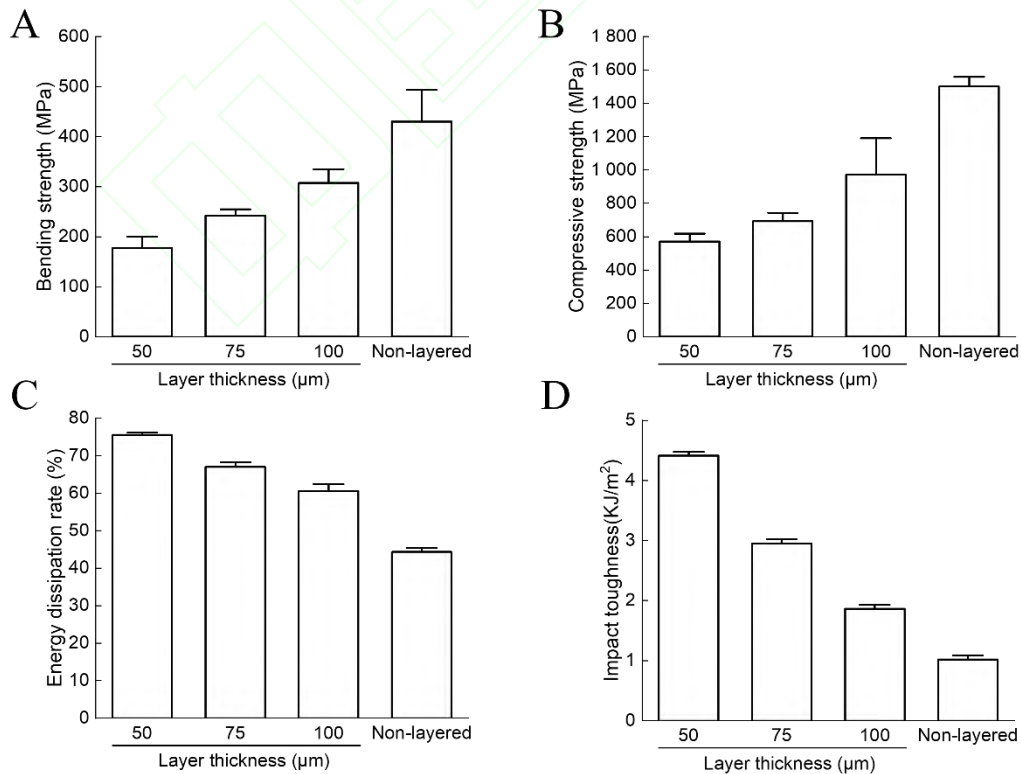


图 4 复合陶瓷材料的准静态与动态力学性能

Fig. 4 Quasi-static mechanical properties and dynamic mechanical properties of composite ceramic material

注: A: Bending strength of composite material with different layer thickness; B: Compressive strength of composite material with different layer thickness; C: Energy dissipation rate of composite material with different layer thickness; D: Impact toughness of composite material with different layer thickness.

2.3 多层复合材料生物相容性实验

MC3T3-E1 细胞的 CCK-8 检测结果 (图 5A) 显示, 在相同的检测时间点 (培养 1、4、7 d) 下, 空白组和复合材料浸提液处理组的吸光度值无显著差异 ($P > 0.05$)。将 BMSCs 接种在复合材料表面 1 d 后, SEM 可以观察到细胞很好地黏附在材料表面 (图 5B), MC3T3-E1 细胞的活死细胞染色检测 (图 5C) 进一步表明, 空白组和材料组之间活细胞与死细胞的比例无显著差异。Transwell 实验结果显示 (图 5D), 材料组和对照组之间无显著差异, 表明复合材料对细胞迁移没有影响。这些研究结果证明, 在本次研究中所制备的 3Y-TZP-PMMA 仿生层状复合材料具有极佳的生物相容性。

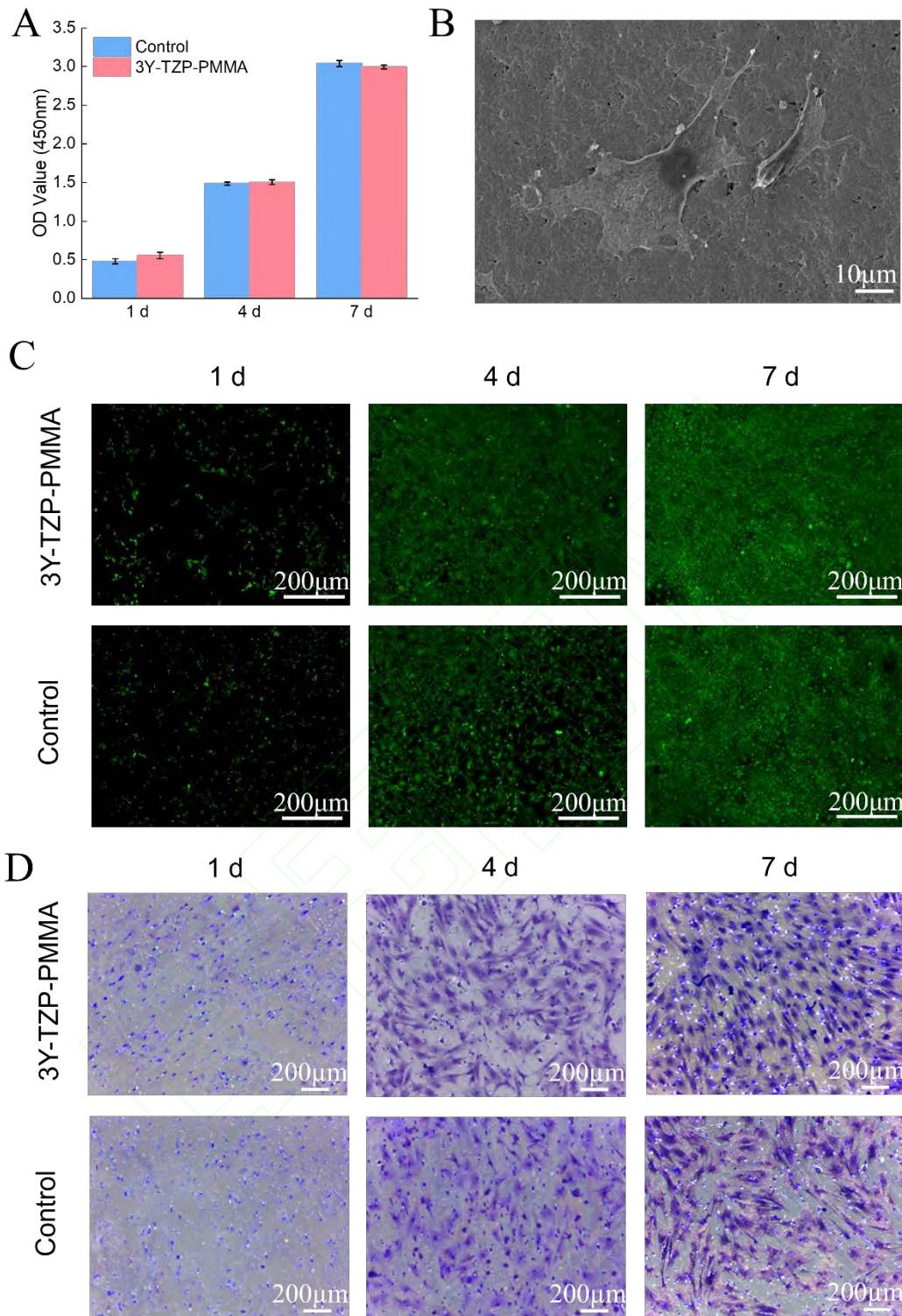


图 5 多层复合陶瓷材料的生物相容性

Fig. 5 Biocompatibility of multilayer composite ceramic material

注: A: Results of CCK-8 assay; B: SEM image showing the injected cells adhered to the surface of the composite material after 1 day $\times 1\ 000$; C: Results of Live/Dead Staining 1, 4, 7 days after cell inoculation $\times 50$; D: Results of Transwell assay 1, 4, 7 days after cell inoculation $\times 20$.

3 讨论

牙科修复材料是制造具有美观、生物相容性、低导热性和优异机械性能的人造牙冠的关键。氧化钇增韧的氧化锆以其卓越的机械性能，美观度和生物相容性而著称，但陶瓷材料固有的脆性，在重复的咀嚼力下容易出现裂纹和断裂，会显著缩短义齿的使用寿命^[8-9]。本研究从天然材料珍珠层中获得灵感，研究中的层状 3Y-TZP 和 PMMA 是模仿天然珍珠层结构中文石和生物聚合物的潜在材料组合^[10-11]，为开发复合牙冠材料提供了一种有前景的方法。

本实验通过 3Y-TZP 粉末加入去离子水球磨均匀后再加入细菌纤维素，制备陶瓷浆料，并且采取流延成型技术制备均匀的柔性陶瓷膜，且通过系统的表征展示了陶瓷膜内部形貌，在此基础上，通过堆叠压制后的陶瓷膜经无压烧结技术，形成层状陶瓷框架，再经有机物聚合处理，得到多层复合陶瓷材料。本研究成功构建的多层复合陶瓷材料在微观层面上由于 3Y-TZP 相变增韧机制^[12]，可以吸收能量并抵抗裂纹扩展，宏观层面上，由于聚合物成功渗透到陶瓷支架的多层结构中以填充层间隙，起到抑制裂纹扩展作用及能量耗散作用，提供外在增韧机制，故本研究于不同尺度上融合了内外增韧机制。在实验研究阶段，首先对所制备的层状结构复合陶瓷材料进行了全面的形貌表征，验证了层状结构的成功构建，并且系统分析了有机物灌注工艺的实施效果及层状结构设计的科学性与合理性。随后通过测定不同组别复合陶瓷材料的力学性能，在准静态力学测试中，随着陶瓷相厚度的减小，材料的弯曲强度与压缩强度呈现逐渐下降的变化趋势，但仍维持在可观的强度水平。动态抗冲击性能测试结果表明，本研究制备的层状复合陶瓷材料在能量吸收以及冲击韧性方面得到显著提升，其中落球试验与落锤试验的测试的能量耗散率与冲击韧性结果分别达到 75.8% 和 44.1 kJ/m²，显著优于无层状结构的对比样陶瓷材料。此外，体外细胞实验结果证实^[13]，该多层复合陶瓷材料具有优良的生物相容性。综上所述，本研究制备出的 3Y-TZP-PMMA 仿生层状复合材料为后续临床应用导向的复合陶瓷牙冠材料的研发工作奠定了相应的理论基础。

参考文献

- [1] Gao K, Guan J, Sun H, et al. Friction and wear behavior of bioinspired composites with nacre-like lamellar and brick-and-mortar architectures against human enamel[J]. *J Mater Sci Technol*, 2022, 128: 133-41. doi:10.1016/j.jmst.2022.04.027.
- [2] Zhang Z, Mu Z, Wang Y, et al. Lightweight structural biomaterials with excellent mechanical performance: a review[J]. *Biomimetics*, 2023, 8(2): 153. doi:10.3390/biomimetics8020153.
- [3] Chen G, Lin T, Guo C, et al. Bending study of six biological models for design of high strength and

- tough structures[J]. *Biomimetics*, 2022, 7(4): 176. doi:10.3390/biomimetics7040176.
- [4] Kong D, Guo A, Wu H, et al. Method for preparing biomimetic ceramic structures with high strength and high toughness[J]. *Ceram Int*, 2023, 49(24): 40284-96. doi:10.1016/j.ceramint.2023.10.001.
- [5] Meng Y F, Yu C X, Zhou L C, et al. Nanograded artificial nacre with efficient energy dissipation[J]. *Innovation*, 2023, 4(6): 100505. doi:10.1016/j.xinn.2023.100505.
- [6] Sun H, Tabrizian P, Qambrani A, et al. Bio-inspired nacre-like zirconia/PMMA composites for chairside CAD/CAM dental restorations[J]. *Dent Mater*, 2024, 40(2): 307-17. doi:10.1016/j.dental.2023.11.017.
- [7] Romario Y S, Bhat C, Ramezani M, et al. Fabrication of translucent graded dental crown using zirconia-yttrium multi-slurry tape casting 3D printer[J]. *J Mech Behav Biomed Mater*, 2024, 152: 106406. doi:10.1016/j.jmbbm.2024.106406.
- [8] Ham J M, Lee J H, Ha S R, et al. Changes in the flexural strength and surface characteristics of different zones of multilayered translucent zirconia during aging process[J]. *J Mater Sci Mater Med*, 2025, 36(1): 78. doi:10.1007/s10856-025-06938-8.
- [9] Nakai H, Inokoshi M, Nozaki K, et al. Additively manufactured zirconia for dental applications[J]. *Materials*, 2021, 14(13): 3694. doi:10.3390/ma14133694.
- [10] Zhu B, Mohamed O, Qambrani A, et al. Residual stress influences on fracture behaviour of bioinspired dental materials[J]. *Int J Mech Sci*, 2025, 304: 110709. doi:10.1016/j.ijmecsci.2025.110709.
- [11] Jiao D, Zhang J, Liu Y Y, et al. Hierarchical toughening of bioinspired nacre-like hybrid carbon composite[J]. *Carbon*, 2021, 171: 409-16. doi:10.1016/j.carbon.2020.09.041.
- [12] Luo J, Wang Q, Cao K, et al. Unraveling the intrinsic phase evolution mechanisms behind strength and toughness improvements in Y-TZP[J]. *Mater Sci Eng A*, 2025, 946: 149170. doi:10.1016/j.msea.2025.149170.
- [13] 杨肖念, 邹多宏. 负载单宁酸的双层壳聚糖屏障膜的制备及其生物相容性的研究[J]. *安徽医科大学学报*, 2024, 59(4): 563-8. doi:10.19405/j.cnki.issn1000-1492.2024.04.001.