

石墨烯及其衍生物掺杂树脂粘接剂对口腔粘接界面力学和生物学性能影响的研究进展

陈文娣¹ 李全利²

1. 安徽省第二人民医院口腔科 合肥 230011;

2. 深圳市龙岗区耳鼻咽喉医院口腔科 深圳 518172

[摘要] 以树脂粘接剂为基础的微创牙体修复技术是目前口腔医学牙体缺损修复最具特色的技术体系, 临床成功的关键在于复合材料与牙体的粘接界面具有良好的耐久性。随着树脂粘接修复体暴露在口腔的时间延长, 修复体逐渐出现边缘微渗漏, 细菌及其产物进入导致继发龋。石墨烯及其衍生物因其独特结构和特殊性能引起国内外学者的关注, 在口腔领域的应用也得到广泛研究。本文就石墨烯及其衍生物在口腔粘接领域的研究作一综述, 对其在口腔粘接领域的应用进行讨论和总结。

[关键词] 石墨烯; 石墨烯衍生物; 粘接

[中图分类号] R781.05 **[文献标志码]** A **[doi]** 10.7518/gjkq.2026224



本文链接

OSID 码

Research progress on the effects of resin adhesives doped with graphene and its derivatives on the mechanical and biological properties of dental adhesive interfaces

Chen Wendi¹, Li Quanli²

1. Dept. of Stomatology, Anhui No.2 Provincial People's Hospital, Hefei 230011, China; 2. Dept. of Stomatology, Longgang Otorhinolaryngology Hospital of Shenzhen, Shenzhen 518172, China

Supported by: Natural Science Research Project of Anhui Educational Committee (2022AH052323)

Correspondence: Li Quanli, Email: ql-li@126.com

[Abstract] Minimally invasive dental restoration technology based on adhesive properties is a characteristic technology system for dental defect repair at present. The key to clinical success lies in the durability and stability of the resin-bonded interface between the composite material and the teeth. Given that the resin-bonded restorations are exposed to the mouth for an extended period, micro-leakage gradually appears at the edges of the restorations and bacteria and their products enter the prosthesis, which leads to secondary caries. Considering its peculiar structure and special properties, graphene and its derivatives have attracted the attention of scholars at home and abroad. Their applications in the field of stomatology have also been widely studied. In this study, we review the research on graphene and its derivatives in the field of dental bonding. Their applications in dental bonding are also discussed and summarized.

[Key words] graphene; graphene derivatives; bonding

树脂粘接剂是微创美学修复的基础, 但是树脂-牙本质粘接界面在使用过程中的降解破坏导致

修复体边缘渗漏、继发龋, 甚至是脱落^[1]。因此, 牙本质粘接界面的持久性、抗菌性能是口腔粘接的关键科学问题, 改善粘接界面的耐久性和抗菌具有重要的科学价值和临床意义^[2-3]。

石墨烯是一种由碳原子组成的六边形二维致密单层片状晶体结构^[4], 其家族包括系列烯衍生物, 如氧化石墨烯 (graphene oxide, GO)、还原

[收稿日期] 2025-01-24; [修回日期] 2025-10-10

[基金项目] 安徽高校自然科学研究重点项目 (2022AH052323)

[第一作者] 陈文娣, 主治医师, 硕士, Email: cwdwendy@126.com

[通信作者] 李全利, 副主任医师, 博士, Email: ql-li@126.com

氧化石墨烯 (reduced graphene oxide, rGO)、氟化石墨烯 (fluorinated graphene, FG)、石墨烯纳米片 (graphene nanoplatelet, GNP) 和石墨烯量子点 (graphene quantum dot, GQD)^[5]。石墨烯及其衍生物作为一种新型材料, 由于其优异的机械性能、物理、电化学、抗菌性能, 目前在口腔粘接界面研究也得到极大关注^[6-7]。本文结合国内外文献, 对石墨烯及其衍生物在口腔粘接领域的应用作一综述。

1 石墨烯在口腔粘接领域的应用

石墨烯的疏水性、低表面能和高范德华力特性, 使其在材料复合过程中分散能力有限^[8], 常常需要表面改性改善其分散性能、防止团聚^[9]。Peireira 等^[10]使用左旋多巴 (3,4-dihydroxyphenyl-L-alanine, L-DOPA) 修饰石墨烯后加入到粘接剂中研究其分散能力、单体聚合度、机械性能、抗菌性能和细胞毒性, 结果表明, 0.25% L-DOPA 修饰石墨烯加入到粘接剂中分散性最好, 单体聚合度最高; 在粘接剂中加入 0.75% L-DOPA 改性石墨烯, 保持了与对照组相似的机械强度, 提高了抗菌性能, 但其细胞毒性最强。Liu 等^[11]将石墨烯加入到正畸粘接剂中评估粘接剂的力学性能和粘接性能, 结果表明, 0.01% 石墨烯组硬度和纳米压痕最高, 与对照组分别提高了 14.9% 和 15.0%, 且提高了剪切粘接强度 (shear bond strength, SBS)。石墨烯呈黑色, 加入不同的量, 使粘接剂呈现褐色、棕褐色等, 其可能影响美学效果。

2 GO 在口腔粘接领域的应用

GO 表面随机分布着大量的羟基、环氧基等含氧官能团, 边缘也引入了羟基和羧基, 这一独特的结构特征使得其在多种溶剂中都具有良好的分散性和多功能性特点^[12]。Alshahrani 等^[13]将 GO 以 0.5% 浓度加入粘接剂中, 使用微拉曼光谱和扫描电镜分析显示, GO 组粘接剂与牙本质形成良好的混合层; GO 组即刻微拉伸强度 (microtensile bond strength, μ TBS) 为 29.81 MPa 略低于非 GO 组的 30.47 MPa; 经过老化处理后, GO 组与非 GO 组相比 μ TBS 较高, 但差异无统计学意义。Bin-Shuwaish 等^[14]也报道了 GO 改性粘接剂与不含 GO 的粘接剂相比, 形成了良好的树脂突, 加入 GO 能

有效提高粘接剂的机械强度; 非 GO 组即刻 μ TBS 为 26.73 MPa, 加入 0.5% GO 的粘接剂即刻 μ TBS 为 30.87 MPa, 当 GO 添加量为 2% 时, 粘接剂的即刻 μ TBS 为 33.20 MPa, 差异有统计学意义; 经过老化处理后, GO 改性粘接剂 μ TBS 与对照组相比仍具有优势。在粘接剂中添加 GO, 对性能的积极影响可能归因于它们的亲水性, GO 的亲水性改善了材料的流动性, 影响了树脂突的形成。此外, GO 的片状结构也增强了材料的强度^[15]。虽然 GO 的含量增加会增加粘接剂的粘接强度, 但可能会影响粘接剂的聚合度, 这主要是由于粘接剂中 GO 含量增加导致光吸收能力受限^[16]。Khan 等^[17]使用含 GO 的硅烷预处理剂处理氧化锆可以增加其表面粗糙度和水接触角, 处理后的氧化锆与树脂粘接剂粘接, 通过 SBS 试验表明, 在预处理剂中加入 GO, 可以改善树脂复合材料与氧化锆粘接界面的 SBS, 且经过老化处理后仍保留其优势。

GO 富含 -OH、-COO²⁻ 基团, 使其具有很高的反应活性, 可以与聚合物、小分子或纳米颗粒通过共价键或非共价键相互作用而结合。Almutairi 等^[18]探究了混合 GO 与磷酸钙 (calcium phosphate, CaP) 作为无机填料, 加入粘接剂对粘接强度的影响; SBS 结果显示, 与空白组 21.11 MPa 相比, 加入 2% GO-CaP 粘接剂组为 28.00 MPa, 5% GO-CaP 粘接剂组为 30.84 MPa, 经过老化处理后实验组 SBS 仍高于空白组; GO-CaP 的加入与 SBS 平均测试值之间存在正线性关系。AlFawaz 等^[19]将 GO 加入含羟磷灰石 (hydroxyapatite, HA) 的粘接剂中, 提高了粘接剂的力学性能; 具有亲水性的 GO 可以吸引钙离子形成 HA, 从而促进粘接剂-牙本质界面的再矿化, 提高其粘接性能。但 Ilie 等^[20]研究结果却不同, 该研究合成功能化 GO 和 HA 纳米颗粒作为粘接剂的无机填料, 其粘接强度与对照组相比较低。这可能是由于 GO-HA 的添加量不同所致, 不同的添加量可能会影响粘接剂的聚合度, 进而影响材料的粘接强度。

GO 片状结构的锋利边缘可以破坏细菌细胞膜, 使细胞内 RNA 缺失, 因而具有良好的抗菌能力^[21]。Pourhajibagher 等^[22]通过琼脂扩散实验和生物膜实验表明, 5% GO 改性正畸粘接剂对变异链球菌的抑菌率达 50.9%, 对 SBS 无不良影响, 且改性正畸粘接剂对人牙龈成纤维细胞无细胞毒性作用^[23]。Lee 等^[24]将生物活性玻璃 (bioactive glass, BAG) 与 GO 混合加入到正畸粘接剂中, 不仅提

高了正畸粘接剂的抗菌能力,还促进了釉质表面的再矿化。Arslan等^[25]通过绿色化学法合成GO纳米银(nano silver, nAg)颗粒,将其加入粘接剂后发现,其对变异链球菌有显著抑制作用。nAg颗粒通过银离子抑制细菌酶,或使细菌DNA复制能力失活。GO可以机械性破坏细菌细胞膜,导致胞内细胞质渗漏、活性氧增加和细胞死亡,还可以包裹在目标细菌细胞表面,并与几乎整个细胞表面相互作用,导致细胞膜快速变形,最终导致细胞死亡。此外,GO作为载体可以固定纳米颗粒,防止其聚集,增加了nAg颗粒的分散能力,提供了稳定的抗菌活性。

将GO引入口腔粘接剂中,可通过其独特的理化性质提升材料性能,但也存在潜在挑战。GO片状结构易因范德华力团聚,导致应力集中,反而降低力学性能^[26]。高浓度GO可能通过活性氧引发细胞毒性^[27],需要控制GO的添加量以保证其生物安全性。此外,GO的吸光特性可能阻碍粘接剂的固化,延长固化时间。

3 rGO在口腔粘接领域的应用

rGO是由GO经过不同还原方法获得的,其含氧官能团比GO少,但其sp²结构和物理性能仍存在^[28]。Alqarawi等^[29]将rGO加入到粘接剂中,研究其对纤维桩的粘接强度的影响,结果表明,桩道经过次氯酸钠冲洗或光动力处理后,不含rGO组粘接强度分别为9.40、8.77 MPa,5% rGO组粘接强度为9.13、8.26 MPa,但两组之间差异不具有统计学意义;桩道经过Er,Cr:YSGG激光处理后,5% rGO组粘接强度为7.14 MPa,高于不含rGO组6.63 MPa,但两组之间差异无统计学意义。由此可见,rGO的加入没有明显改善粘接剂的强度,可能是因为rGO的加入降低了粘接剂的聚合度。Akram等^[30]将rGO与nAg掺杂,制备rGO/nAg纳米填料改性牙本质粘接剂,添加0.25%的rGO/nAg进行粘接剂改性后,改性粘接剂的 μ TBS和四点弯曲强度未受影响,与未改性粘接剂水平相当;rGO/nAg对变异链球菌有明显的抑菌效果;增加rGO/nAg含量会影响粘接剂的聚合度,导致粘接强度下降。rGO作为GO还原处理后产物,其含氧基团减少,较GO分散性差,在粘接剂基质中难以均匀分散,导致团聚^[31]。将rGO均匀分散到粘接剂中,生产工艺复杂,且需控制浓度避免团聚。

虽然rGO比GO毒性低^[32],但仍具有潜在的细胞毒性,需要进行严格的体内外安全性实验,探索其安全浓度阈值。

4 FG在口腔粘接领域的应用

FG是由GO通过氟化反应所得,是石墨烯家族的新型衍生物,它不但保留了石墨烯独特的二维结构,又由于氟原子的引入,使其具有一些不同于石墨烯的优异性能。Lee等^[33]将FG与BAG混合作为生物材料加入到正畸粘接剂中,FG联合BAG改性正畸粘接剂与变异链球菌共培养24 h后,其光密度(optical density, OD)值比对照组明显降低,FG联合BAG对变异链球菌有抑制作用;BAG释放钙、磷离子促进HA形成,通过扫描电子显微镜观察到实验材料再矿化。Hussein等^[34]也得出了类似的结论,FG联合BAG改性的正畸粘接剂具有抗菌和再矿化能力,在正畸治疗中可以预防牙齿脱矿方面,有潜在的应用价值。目前,对于FG的研究仍处于起步阶段,关于其性质和应用的报道很少,特别是在生物医学方面,未来需要更多的研究来推动其在口腔粘接领域的临床应用。

5 GNP在口腔粘接领域的应用

GNP是多层结构,基于其纳米刀的能力可以穿透和破坏细胞膜,具有抗菌性能;此外,它们的结构与石墨烯结构相似,GNP不像GO那样含有能促进细菌黏附的官能团,具有抗黏附特性。Bregnocchi等^[35]研究使用GNP作为牙科粘接剂无机填料可能性,测试了改性粘接剂的粘接性能、抗菌能力和抗生物膜性能,结果表明,含GNP粘接剂的粘接强度与对照组相当,0.2% GNP组粘接剂与变异链球菌共培养24 h后,变异链球菌量仅为对照组的28%,GNP能够抑制变异链球菌的黏附和生长。石墨烯基纳米复合材料的性能受到石墨烯的团聚和再堆积的强烈影响,并在石墨烯和粘接剂树脂基质之间产生弱相互作用,这种脆弱的相互作用将导致物理力学和功能特性的降低。硅烷化技术可以降低填料的表面能,防止石墨烯纳米颗粒团聚,增强与树脂的共聚。Akram等^[36]将GNP硅烷化处理后加入粘接剂中,结果发现:与单独添加GNP的粘接剂相比,硅烷化处理后

GNP 粘接剂具有更强的机械和抗菌性能。Akram 等^[30]使用 nAg 修饰 GNP 获得多功能协调效应,并利用 2 种材料在抗菌、抗生物膜和树脂-牙本质粘接界面的机械强度方面的有益特性,将 GNP/nAg 加入到粘接剂中增强粘接界面的完整性同时保持潜在的抗菌功能。GNP 是纳米尺寸的石墨烯片层,其疏水性强,可能阻碍粘接剂与亲水性牙本质的润湿,需结合亲水性改性或与其他粘接单体协同使用。

6 GQD 在口腔粘接领域的应用

GQD 是小于 100 nm 零维碳纳米材料,可视为非常微小的石墨烯片,与石墨烯非常相似,但是其碳平面边缘富含羧基、羟基等含氧官能团,这些官能团使氧化 GQD 表面高度亲水,提供了将这些含氧基团与生物分子或其他聚合物上的特定官能团结合的可能性。Chen 等^[37]研究 GQD 与牙本质胶原的交联能力,发现 GQD 可以与胶原通过氢键、静电相互作用形成非共价交联,在 1-乙基-3-(3-二甲氨基丙基)碳化二亚胺(1-ethyl-3-(3-dimethylaminopropyl) carbodiimide, EDC) 的协同作用下,GQD 与胶原形成共价交联,此外 GQD 可以通过螯合基质金属蛋白酶(matrix metalloproteinase, MMP) 分子中的活性位点,催化金属锌离子抑制胶原酶活性;以 GQD 与 EDC 为预处理剂,采用酸蚀冲洗胶粘体系,GQD 在 EDC 的协同作用下与酸蚀后暴露的牙本质胶原纤维形成共价交联,抑制混合层中 MMP 活性,减少胶原纤维的水解,维持粘接界面的完整性,提高粘接耐久性。此外,由于 GQD 的电子相互作用,它可以与金属纳米粒子结合并作为纳米载体。GQD 中含有丰富的含氧基团,这些基团可以通过共轭键与各种化学物质进行化学接枝。Yin 等^[38]通过阿仑膦酸钠(alendronate, ALN) 功能化 GQD 合成 nAg,制备了 ALN-GQD-nAg,并评估其抗菌、矿化和变色性能,结果表明,ALN-GQD-nAg 对牙齿主要成分 HA 具有亲和力,促进牙本质矿化,对变异链球菌生物膜具有良好的抗菌性能。GQD 作为新型纳米材料,凭借其独特物理性能、表面化学活性,在口腔粘接领域展现出显著潜力。GQD 的光致发光特性可尝试标记粘接剂,通过荧光成像技术检测粘接界面的微渗漏,未来可以探索该方向的研究。但合成 GQD 存在局限性,难以准确控制 GQD

的尺寸、形状、边缘状态和官能团。目前研究表明,GQD 具有低细胞毒性,体外实验^[39]显示,低浓度 GQD 对口腔成纤维细胞和牙髓细胞无明显毒性,但缺乏长期数据来验证其生物安全性。

石墨烯及其衍生物应用于口腔粘接剂的优点及局限性见表 1。

表 1 石墨烯及其衍生物应用于口腔粘接剂的优点及局限性

Tab 1 Advantages and limitations of graphene and its derivatives in dental adhesives		
材料	优点	局限性
石墨烯	高强度、高模量,提高粘接剂机械性能、抗菌性	深色影响美观;易团聚,分散性差;潜在生物毒性争议
GO	亲水性和分散性较好;可功能化修饰;提高粘接剂机械性能、抗菌性	力学性能低于原始石墨烯;易团聚;含量过高影响粘接剂的聚合度
rGO	保留部分官能团,可功能化修饰;抗菌性	分散性差(需表面改性);力学增强效果有限;颜色可能影响美观
FG	抗菌性、潜在的再矿化能力(氟元素协同作用)	生物相容性争议;疏水性强、分散性差
GNP	提高粘接剂机械性能、抗菌性	易团聚(需分散剂辅助);深色问题仍存在
GQD	尺寸小、分散性好;表面官能团丰富,易改性;光致发光性;提高粘接剂抗菌性和粘接耐久性	合成工艺复杂,重复性差;长期生物安全性需验证

7 结论与展望

石墨烯及其衍生物在提高粘接机械强度方面的报道较为矛盾,可能与种类、添加量和工艺有关,其可以显著改善抗菌性能,维持粘接界面完整性,提高粘接耐久性。此外,石墨烯基材料还具有诱导矿化,促进 HA 沉积的能力,在口腔粘接领域的应用具有巨大潜力,但也面临许多挑战。首先,不同合成路线和条件制备的石墨烯基材料具有很大的非均质性,因而具有不同的理化性质,研究成果很难具有重复性,缺乏统一的临床评价标准。其次,石墨烯基材料易团聚和堆叠,导致应力集中和材料性能下降,需要表面改性或添加分散剂改善分散性和界面结合,但这可能增加了制备的复杂性。此外,虽然石墨烯本身生物相容性较好,但纳米材料可能引发炎症反应或细胞毒性,目前的研究多局限于体外细胞实验或短期动物模型,缺乏长期安全性证据。最后,大部分石

石墨烯材料为深色,可能会改变粘接剂的透光性及颜色,延长固化时间,影响修复体的美观。未来需要更多的研究来解决上述问题,推动石墨烯及其衍生物在口腔粘接领域的应用进展。

利益冲突声明:作者声明本文无利益冲突。

8 参考文献

- [1] Pashley DH, Tay FR, Breschi L, et al. State of the art etch-and-rinse adhesives[J]. *Dent Mater*, 2011, 27(1): 1-16.
- [2] Breschi L, Mazzoni A, Ruggeri A, et al. Dental adhesion review: aging and stability of the bonded interface[J]. *Dent Mater*, 2008, 24(1): 90-101.
- [3] 陈吉华, 肖玉鸿, 李芳. 牙科粘接材料抗菌改性的研究进展[J]. *中华口腔医学杂志*, 2010, 45(8): 504-508.
Chen JH, Xiao YH, Li F. Research progress of antibacterial modification of dental adhesive materials [J]. *Chin J Stomatol*, 2010, 45(8): 504-508.
- [4] Novoselov KS, Geim AK, Morozov SV, et al. Two-dimensional gas of massless Dirac fermions in graphene[J]. *Nature*, 2005, 438(7065): 197-200.
- [5] Shulga NN, Shulga IS. Antibacterial properties of tea[J]. *Eurasian Union Sci*, 2020, 1(70): 31-33.
- [6] Guazzo R, Gardin C, Bellin G, et al. Graphene-based nanomaterials for tissue engineering in the dental field[J]. *Nanomaterials (Basel)*, 2018, 8(5): E349.
- [7] Huang X, Qi XY, Boey F, et al. Graphene-based composites[J]. *Chem Soc Rev*, 2012, 41(2): 666-686.
- [8] Sun C, Huang Y, Shen Q, et al. Embedding two-dimensional graphene array in ceramic matrix[J]. *Sci Adv*, 2020, 6: eabb1338.
- [9] Lund S, Kauppila J, Sirkiä S, et al. Fast high-shear exfoliation of natural flake graphite with temperature control and high yield[J]. *Carbon*, 2021, 174: 123-131.
- [10] Pereira R, Lins RBE, Lima EFS, et al. Properties of a dental adhesive containing graphene and DOPA-modified graphene[J]. *Polymers (Basel)*, 2024, 16(14): 2081.
- [11] Liu S, El-Angbawi A, Rosa V, et al. Physico-mechanical properties and bonding performance of graphene-added orthodontic adhesives[J]. *J Funct Biomater*, 2024, 15(8): 204.
- [12] Aliyev E, Filiz V, Khan MM, et al. Structural characterization of graphene oxide: surface functional groups and fractionated oxidative debris[J]. *Nanomaterials*, 2019, 9(8): 1180.
- [13] Alshahrani A, Bin-Shuwaish MS, Al-Hamdan RS, et al. Graphene oxide nano-filler based experimental dentine adhesive. A SEM/EDX, micro-Raman and microtensile bond strength analysis[J]. *J Appl Biomater Funct Mater*, 2020, 18: 2280800020966936.
- [14] Bin-Shuwaish MS, Maawadh AM, Al-Hamdan RS, et al. Influence of graphene oxide filler content on the dentin bond integrity, degree of conversion and bond strength of experimental adhesive. A SEM, micro-Raman, FTIR and microtensile study[J]. *Mater Res Express*, 2020, 7(11): 115403.
- [15] Kim J, Yim BS, Kim JM, et al. The effects of functionalized graphene nanosheets on the thermal and mechanical properties of epoxy composites for anisotropic conductive adhesives (ACAs)[J]. *Microelectron Reliab*, 2012, 52(3): 595-602.
- [16] Aguiar TR, de Oliveira M, Arrais CA, et al. The effect of photopolymerization on the degree of conversion, polymerization kinetic, biaxial flexure strength, and modulus of self-adhesive resin cements[J]. *J Prosthet Dent*, 2015, 113(2): 128-134.
- [17] Khan AA, Al-Khureif AA, Saadaldin SA, et al. Graphene oxide-based experimental silane primers enhance shear bond strength between resin composite and zirconia[J]. *Eur J Oral Sci*, 2019, 127(6): 570-576.
- [18] Almutairi B, Kattan HF, BinMahfooz AM, et al. Synergistic effect of graphene oxide/calcium phosphate nanofiller in a dentin adhesive on its dentin bond integrity and degree of conversion. A scanning electron microscopy, energy dispersive X-ray spectroscopy, Fourier transform infrared, micro-Raman, and bond strength study[J]. *Microsc Res Tech*, 2021, 84(9): 2082-2094.
- [19] AlFawaz YF, Almutairi B, Kattan HF, et al. Dentin bond integrity of hydroxyapatite containing resin adhesive enhanced with graphene oxide nano-particles—an SEM, EDX, micro-raman, and microten-

- sile bond strength study[J]. *Polymers (Basel)*, 2020, 12(12): E2978.
- [20] Ilie N, Erich Serfözö N, Prodan D, et al. Synthesis and performance of experimental resin-based dental adhesives reinforced with functionalized graphene and hydroxyapatite fillers[J]. *Mater Des*, 2022, 221: 110985.
- [21] Liu SB, Hu M, Zeng TH, et al. Lateral dimension-dependent antibacterial activity of graphene oxide sheets[J]. *Langmuir*, 2012, 28(33): 12364-12372.
- [22] Pourhajibagher M, Bahador A. Orthodontic adhesive doped with nano-graphene oxide: physico-mechanical and antimicrobial properties[J]. *Folia Med (Plovdiv)*, 2021, 63(3): 413-421.
- [23] Pourhajibagher M, Ghorbanzadeh R, Salehi-Vaziri A, et al. *In vitro* assessments of antimicrobial potential and cytotoxicity activity of an orthodontic adhesive doped with nano-graphene oxide[J]. *Folia Med (Plovdiv)*, 2022, 64(1): 110-116.
- [24] Lee SM, Yoo KH, Yoon SY, et al. Enamel anti-demincalization effect of orthodontic adhesive containing bioactive glass and graphene oxide: an *in-vitro* study[J]. *Materials*, 2018, 11(9): 1728.
- [25] Arslan S, Ekrikaya S, Ildiz N, et al. Evaluation of the antibacterial activity of dental adhesive containing biogenic silver nanoparticles decorated nanographene oxide nanocomposites (Ag@nGO NCs) and effect on bond strength to dentine[J]. *Odontology*, 2024, 112(2): 341-354.
- [26] Dong Y, Li J, Yang XY. Reactions between graphene oxide sheets cause irreversible agglomeration [J]. *Sci Bull (Beijing)*, 2022, 67(19): 1943-1945.
- [27] Liao C, Li Y, Tjong SC. Graphene nanomaterials: synthesis, biocompatibility, and cytotoxicity[J]. *Int J Mol Sci*, 2018, 19(11): E3564.
- [28] Yoon Y, Kye H, Yang WS, et al. Comparing graphene oxide and reduced graphene oxide as blending materials for polysulfone and polyvinylidene difluoride membranes[J]. *Appl Sci*, 2020, 10(6): 2015.
- [29] Alqarawi FK, Alkahtany MF, Almadi KH, et al. Influence of different conditioning treatments on the bond integrity of root dentin to rGO infiltrated dentin adhesive. SEM, EDX, FTIR and MicroRaman study[J]. *Polymers (Basel)*, 2021, 13(10): 1555.
- [30] Akram Z, Aati S, Clode P, et al. Formulation of nano-graphene doped with nano silver modified dentin bonding agents with enhanced interfacial stability and antibiofilm properties[J]. *Dent Mater*, 2022, 38(2): 347-362.
- [31] Sheng Y, Zhou Y, Tang C, et al. Redispersible reduced graphene oxide prepared in a gradient solvent system[J]. *Nanomaterials (Basel)*, 2022, 12(12): 1982.
- [32] Bellier N, Baipaywad P, Ryu N, et al. Recent biomedical advancements in graphene oxide- and reduced graphene oxide-based nanocomposite nanocarriers[J]. *Biomater Res*, 2022, 26(1): 65.
- [33] Lee SM, Yoo KH, Yoon SY, et al. Enamel anti-demincalization effect of orthodontic adhesive containing bioactive glass and graphene oxide: an *in-vitro* study[J]. *Materials*, 2018, 11(9): 1728.
- [34] Hussein AH, Yassir YA. A novel graphite fluoride/bioactive glass-containing orthodontic primer with antibacterial and remineralization properties: an *in-vitro* study[J]. *J Adhes Dent*, 2024, 26: 253-262.
- [35] Bregnocchi A, Zanni E, Uccelletti D, et al. Graphene-based dental adhesive with anti-biofilm activity[J]. *J Nanobiotechnology*, 2017, 15(1): 89.
- [36] Akram Z, Aati S, Shrestha B, et al. Silanization of nanographene platelets improves interaction with the dentin bonding resin matrix and enhances interfacial bond integrity to dentin[J]. *Biomater Sci*, 2021, 9(24): 8335-8346.
- [37] Chen W, Jin HM, Zhang H, et al. Synergistic effects of graphene quantum dots and carbodiimide in promoting resin-dentin bond durability[J]. *Dent Mater*, 2021, 37(10): 1498-1510.
- [38] Yin IX, Niu JY, Mei ML, et al. Tooth-binding graphene quantum dots silver nanocomposites for prevention of dental caries[J]. *Int J Nanomedicine*, 2024, 19: 11195-11212.
- [39] Bae G, Cho H, Hong BH. A review on synthesis, properties, and biomedical applications of graphene quantum dots (GQDs)[J]. *Nanotechnology*, 2024, 35(37): 372001.

(本文编辑 张玉楠)