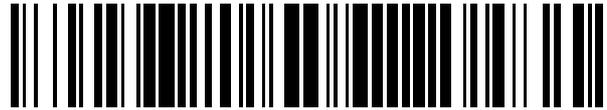


19



OFICINA ESPAÑOLA DE
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 593 877**

51 Int. Cl.:

A61K 6/00 (2006.01)

A61K 6/083 (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

86 Fecha de presentación y número de la solicitud internacional: **10.12.2010 PCT/JP2010/007203**

87 Fecha y número de publicación internacional: **23.06.2011 WO11074222**

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **10.12.2010 E 10837256 (6)**

97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **24.08.2016 EP 2380551**

54 Título: **Composición endurecible para uso dental y resina compuesta que comprende a la misma**

30 Prioridad:

18.12.2009 JP 2009288115

45 Fecha de publicación y mención en BOPI de la traducción de la patente:

13.12.2016

73 Titular/es:

**KURARAY NORITAKE DENTAL INC. (100.0%)
1621 Sakazu,
Kurashiki-shi, Okayama 710-0801, JP**

72 Inventor/es:

**OKUBAYASHI, MASAKI;
KITA, HIROTAKA;
TAKAHATA, YUSUKE y
OTA, AKIKO**

74 Agente/Representante:

UNGRÍA LÓPEZ, Javier

ES 2 593 877 T3

Aviso: En el plazo de nueve meses a contar desde la fecha de publicación en el Boletín Europeo de Patentes, de la mención de concesión de la patente europea, cualquier persona podrá oponerse ante la Oficina Europea de Patentes a la patente concedida. La oposición deberá formularse por escrito y estar motivada; sólo se considerará como formulada una vez que se haya realizado el pago de la tasa de oposición (art. 99.1 del Convenio sobre Concesión de Patentes Europeas).

DESCRIPCIÓN

Composición endurecible para uso dental y resina compuesta que comprende a la misma

5 **Campo técnico**

La presente invención se refiere a una composición endurecible dental que puede usarse, de manera adecuada, como un material dental, en particular una resina compuesta dental, que puede usarse como un sustituto para una parte de un diente natural o un diente natural completo en el campo del tratamiento dental.

10

Técnica antecedente

Una composición dental endurecible que contiene un monómero polimerizable, una carga y un iniciador de la polimerización se denomina resina compuesta y este material dental se usa ampliamente en la actualidad como material restaurador para reparar fracturas de dientes y de la caries dental. Se necesita que una composición dental endurecible tenga las siguientes propiedades. Específicamente, como un producto endurecido obtenido después de la cura de polimerización, se necesita que la composición dental endurecible tenga una fuerza y dureza mecánica suficiente como para servir como un sustituto para los dientes naturales, tener resistencia a la presión de la mordida en una cavidad oral, suavidad superficial y brillo, etc. Además, como una pasta que no se ha polimerizado y endurecido todavía, se espera que la composición dental endurecible ofrezca facilidad de manejo (o tener propiedades de manejo excelentes) para los odontólogos y dentistas, por ejemplo, una fluidez adecuada y propiedades de formación, falta de adherencia a los instrumentos dentales, no ser pegajoso, etc.

15

20

25

30

35

40

45

50

55

Estas propiedades de la composición dental endurecible se ven influenciadas en gran medida por el material, la forma, el tamaño de partícula, y el contenido de una carga usada en la misma y por la combinación de cargas usadas conjuntamente. Por ejemplo, cuando se usa una carga inorgánica que tiene un tamaño de partícula promedio de más de 1 μm , la tasa de carga de la carga en el monómero polimerizable puede aumentarse fácilmente y por lo tanto puede obtenerse un producto endurecido con la suficiente fuerza mecánica y una pasta con propiedades de manejo excelentes. Sin embargo, el uso de dicha carga inorgánica tiene un inconveniente, en tanto que es difícil obtener un brillo satisfactorio incluso después del pulido final, y en caso de obtener un brillo satisfactorio, el brillo no se mantiene durante un tiempo prolongado. Por otra parte, cuando se usa una carga inorgánica en partículas ultrafinas que tiene un tamaño de partícula de 1 μm o menos, se mejoran la suavidad superficial y el brillo después del pulido del producto endurecido y la duración del brillo en la cavidad oral. Sin embargo, el uso de dicha carga inorgánica en partículas ultrafinas tiene un inconveniente, en tanto que cuando se usa la carga inorgánica y se amasa con el monómero polimerizable, aumenta considerablemente la viscosidad de la pasta resultante, lo que dificulta el aumento del contenido de la carga. Como resultado, se reduce la fuerza mecánica del producto endurecido y la composición pastosa no polimerizada se hace pegajosa, lo que reduce las propiedades de manipulación. En estas circunstancias, es difícil aumentar la fuerza mecánica y la suavidad superficial y el brillo después del pulido del producto endurecido y las propiedades de manipulación de la pasta de un modo equilibrado.

Por otra parte, se necesita que las composiciones dentales endurecibles no solo tengan las propiedades mencionadas, sino también que se asemejen a los dientes naturales, es decir, que tengan propiedades ópticas tales como el color, la transparencia y la difusión de la luz similares a las de los dientes naturales. En particular en los últimos años, ha habido demanda de composiciones dentales endurecibles similares a aquellas de la dentina o propiedades ópticas similares a aquellas del esmalte, de tal forma que se asemejen a las partes respectivas de un diente que se vaya a reparar. En otras palabras, se prevé el uso de composiciones dentales endurecibles que tengan diferentes colores, transparencias y difusiones de luz para diferentes partes. Es posible ajustar el color y la transparencia ajustando el contenido de un pigmento, pero es difícil ajustar la difusión de la luz solo mediante el ajuste del contenido del pigmento.

La bibliografía de patente 1 describe una pasta dental que contiene al menos un 55% en peso de un sílice poroso no pirogénico y partículas de sílice primarias no agregadas que tengan un diámetro medio de como máximo aproximadamente 200 nm. Más específicamente, un ejemplo divulga una pasta dental que contiene, como cargas, partículas de sílice no agregadas que tienen un tamaño de partícula promedio de aproximadamente 75 nm y un sílice agregado no pirogénico obtenido mediante secado por nebulización de un sol de sílice que tiene un tamaño de partícula de aproximadamente 75 nm para agregar las partículas.

La bibliografía de patente 2 describe un material dental compuesto que contiene un monómero polimerizable, un tipo de carga, y otro tipo de carga. La primera carga se obtiene agregando partículas de carga inorgánica que tienen un tamaño de partícula promedio de 0,01 a 1 μm y sometiendo a las partículas agregadas resultantes a tratamiento, de tal forma que las partículas primarias se unen entre sí mediante enlaces débiles, y tiene una diferencia de índice de refracción de 0,06 o menos respecto del monómero polimerizable endurecido. La última carga tiene una diferencia de índice de refracción de más de 0,06 respecto del monómero polimerizable endurecible y tiene un tamaño de partícula medio de 1 μm o más. Este material dental compuesto tiene un grado D de difusión de 0,002 a 0,3, cuando se representa por la siguiente fórmula (1):

65

$$D = (I_{20}/\cos 20^\circ + I_{70}/\cos 70^\circ)/(2I_0) \dots (1)$$

5 donde I indica la intensidad de la luz transmitida a través de una muestra, e I_0 , I_{20} e I_{70} indica las intensidades de la luz transmitida medida a ángulos de 0, 20, y 70 grados, respectivamente, con respecto a la dirección perpendicular a la placa de la muestra (la dirección de luz incidente). Un ejemplo de la bibliografía de patente 2 divulga un material dental compuesto que contiene un monómero polimerizable, un tipo de carga, y otro tipo de carga. La primera carga se obtiene agregando cristal de boroaluminosilicato de bario que tiene un tamaño de partícula promedio de 0,7 μm y calcinando las partículas agregadas resultantes de tal forma que las partículas primarias se unen entre sí mediante enlaces débiles, y tiene un índice de refracción de 1,55. La segunda carga se obtiene agregando sílice esférico que tiene un tamaño de partícula promedio de 0,2 μm y calcinando las partículas agregadas resultantes.

10 La bibliografía de patente 3 describe una composición dental endurecible que contiene un monómero polimerizable, y una carga compuesta orgánica-inorgánica que tiene una diferencia de índice de refracción de 0,01 o más en valor absoluto respecto del monómero polimerizable endurecido y que tiene un tamaño de partícula promedio de 1 a 20 μm . En esta composición dental endurecible, el grado de difusión D representado por la fórmula anterior (1) tiene un valor de 0,01 o más.

15 El documento JPH09169613 A divulga composiciones dentales que comprenden un monómero polimerizable y dos tipos de cargas con diferentes índices de refracción.

20 LISTA DE CITAS

Bibliografía de patente 1, documento JP 2005-517688 T
 25 Bibliografía de patente 2, documento JP 09(1997)-255516 A
 Bibliografía de patente 3, documento JP 2002-138008 A

Sumario de la invención

30 Problema técnico

La pasta dental descrita en la bibliografía de patente 1 usa partículas de sílice no agregadas y partículas agregadas porosas de sílice no pirogénica obtenidas mediante secado por nebulización de partículas de sílice para agregarlas. Sin embargo, esta pasta dental no usa partículas hechas de materiales con diferentes índices de refracción juntos, y no puede lograr un buen equilibrio entre una difusión de la luz y transparencia satisfactorias.

35 El material dental compuesto descrito en la bibliografía de patente 2 usa partículas de sílice que tienen un tamaño de partícula promedio de 0,2 μm como partículas primarias, lo que dificulta lograr tanto una alta transparencia como un alto grado de difusión. Además, en la carga de cristal de boroaluminosilicato de bario, las partículas primarias están débilmente unidas entre sí, lo que dificulta la producción estable de un material dental compuesto que tiene un cierto nivel de propiedades de pasta. Además, ya que las propiedades de la pasta se deterioran con el paso del tiempo, este material dental compuesto no es necesariamente fácil de manejar y tiene posibilidades de mejora.

40 La composición dental endurecible descrita en la bibliografía de patente 3 usa una carga compuesta orgánica-inorgánica que tiene una diferencia de índice de refracción de 0,01 o más respecto del monómero polimerizable endurecido y que tiene un tamaño de partícula promedio de 1 a 20 μm , y el uso de esta carga proporciona propiedades de manipulación a la composición de pasta y suavidad superficial y brillo después del pulido y difusión de la luz al producto endurecido. El uso de la carga compuesta orgánica-inorgánica, sin embargo, reduce el contenido de la carga inorgánica en el producto endurecido, y da lugar al enlace débil entre la carga compuesta orgánica-inorgánica y el monómero polimerizable en forma de matriz. Como resultado, esta composición dental endurecible no puede tener una fuerza mecánica suficiente y tiene posibilidades de mejora.

45 La presente invención se ha preparado para resolver los problemas convencionales anteriores, y es un objeto de la presente invención proporcionar una composición dental endurecible que muestra tanto una excelente difusión de la luz como una transparencia excelente, y que tiene una fuerza mecánica y una suavidad superficial y brillo después del pulido en forma de un producto endurecido excelentes así como buenas propiedades de manejo en forma de una pasta. Es otro objeto de la presente invención proporcionar una resina compuesta que muestra tanto una excelente difusión de la luz como una transparencia excelente y que tiene una fuerza mecánica y una suavidad superficial y brillo después del pulido en forma de un producto endurecido excelentes así como buenas propiedades de manejo en forma de una pasta.

60 Solución al problema

La presente invención es una composición dental endurecible que incluye: un monómero polimerizable (A) que tiene un índice de refracción de 1,52 a 1,58 después de la polimerización; partículas inorgánicas (B) que tienen un índice de

refracción de 1,43 a 1,50; y partículas inorgánicas (C) que tienen un índice de refracción de 1,43 a 1,58. Las partículas inorgánicas (B) son agregados de finas partículas inorgánicas que tienen un tamaño de partícula promedio de 2 a 50 nm, y el contenido de las partículas inorgánicas (B) es del 0,1 al 10% en peso, en donde

5 En la presente invención, es preferible que las partículas inorgánicas (B) tengan un tamaño de partícula promedio de 1,0 a 20 μm . Es preferible que las partículas inorgánicas (B) tengan un área superficial específica de 50 a 400 m^2/g y un volumen de poro de 0,05 a 1,5 ml/g .

10 Las partículas inorgánicas (C) incluyen: las partículas inorgánicas no agregadas (C-I) que tienen un tamaño de partícula promedio de 0,1 a 1,0 μm ; y partículas inorgánicas (C-II) que tienen un tamaño de partícula promedio de 1 a 20 μm y que incluyen finas partículas a base de sílice que tienen un tamaño de partícula promedio de 2 a 50 nm y un óxido que contiene al menos un metal pesado, y que la relación en peso entre las partículas inorgánicas (C-I) y las partículas inorgánicas (C-II) sea de 1:4 a 4:1.

15 En la presente invención, es preferible que la diferencia entre el índice de refracción del monómero polimerizable (A) después de la polimerización y el índice de refracción de las partículas inorgánicas (C) sea de 0,03 o menos. Es preferible que la diferencia entre el índice de refracción del monómero polimerizable (A) después de la polimerización y el índice de refracción de las partículas inorgánicas (B) sea de 0,05 o más.

20 Preferiblemente, la composición dental endurecible de la presente invención contiene del 8 al 40% en peso del monómero polimerizable (A), del 0,1 al 10% en peso de las partículas inorgánicas (B), y del 59,9 al 91,9% en peso de las partículas inorgánicas (C). En una realización, la composición dental endurecible de la presente invención incluye además del 1 al 10% en peso de partículas inorgánicas ultrafinas (D) que tienen un tamaño de partícula promedio de 5 a 50 nm.

25 La presente invención también es una resina compuesta que comprende la composición dental endurecible descrita anteriormente.

30 Efectos ventajosos de la invención

De acuerdo con la composición dental endurecible de la presente invención, puede obtenerse un producto endurecido que tiene tanto una buena difusión de la luz como una elevada transparencia. Además, el producto endurecido también tiene una suavidad superficial y brillo elevados después del pulido y una alta durabilidad del brillo, y por lo tanto, la composición dental endurecible de la presente invención ofrece una buena apariencia estética. De acuerdo con la composición dental endurecible de la presente invención, puede obtenerse un producto endurecido que tiene una elevada fuerza mecánica. Además, la composición dental endurecible de la presente invención tiene, en forma de pasta, buenas propiedades de manejo y una fluidez y propiedades de conformado adecuadas. Se reducen la adherencia a instrumentos dentales y la pegajosidad de la composición dental endurecible y se suprime el deterioro de la composición dental endurecible con el paso del tiempo. Esto es, esta composición es muy fácil de manipular. La composición dental endurecible de la presente invención puede usarse de manera particularmente adecuada en forma de una resina compuesta y esta resina compuesta muestra tanto una excelente difusión de la luz como una transparencia excelente, y tiene una fuerza mecánica y una suavidad superficial y brillo después del pulido en forma de un producto endurecido excelentes así como buenas propiedades de manejo en forma de una pasta.

45 Descripción de las realizaciones

Monómero polimerizable (A)

50 Como monómero polimerizable (A) usado en la presente invención, puede usarse un monómero polimerizable conocido sin limitación, en tanto que tenga un índice de refracción de 1,52 a 1,58 después de la polimerización. El índice de refracción del monómero polimerizable (A) después de la polimerización es preferentemente de 1,525 a 1,58, y más preferentemente de 1,53 a 1,58, para facilitar el aumento de la diferencia en el índice de refracción respecto de las partículas inorgánicas (B). Tal como se afirma en el presente documento, el índice de refracción del monómero polimerizable (A) después de la polimerización significa que el índice de refracción del monómero polimerizable (A).

55 Para obtener un índice de refracción deseado del monómero polimerizable (A) después de la polimerización, puede seleccionarse un tipo de monómero polimerizable, o pueden mezclarse varios tipos de monómeros polimerizables que tienen diferentes índices de refracción en una proporción adecuada, teniendo en consideración que un polímero obtenido mediante la polimerización de un monómero polimerizable tiende a tener un índice de refracción ligeramente mayor que el monómero polimerizable en sí.

60 Entre los monómeros polimerizables (A) mencionadas anteriormente, se usa de manera adecuada un monómero de radical polimerizable. Los ejemplos específicos de monómero de radical polimerizable en el monómero polimerizable (A) incluyen ésteres de ácido α -cianoacrilico, ácido (met)acrilico, ácido acrilico α -halogenado, ácido crotonico, ácido cinámico, ácido sórbico, ácido maleico, ácido itacónico, etc., (met)acrilamida, derivados de (met)acrilamida, ésteres de vinilo, ésteres de vinilo, derivados de mono-N-vinilo, y derivados de estireno. Entre estos, se prefieren los ésteres del ácido (met)acrilico. En la presente invención, "(met)acril" significa metacrililo o acrililo.

Se dan Ejemplos de monómeros polimerizables basados en éster del ácido (met)acrílico en el presente documento a continuación.

(I) (met)acrilatos monofuncionales incluyen:

(met)acrilato de metilo, (met)acrilato de isobutilo, (met)acrilato de bencilo, (met)acrilato de laurilo, (met)acrilato de 2-(N,N-dimetilamino)etilo, (met)acrilato de 2,3-dibromopropilo, (met)acrilato de 2-hidroxietilo, (met)acrilato de 6-hidroxihexilo, (met)acrilato de 10-hidroxidecilo, mono(met)acrilato de propilenglicol, mono(met)acrilato de glicerol, mono(met)acrilato de eritritol, (met)acrilamida de N-metilo, (met)acrilamida de N-hidroxietilo, N-(dihidroxietil)(met)acrilamida, bromuro de (met)acriloiloxidodecilo piridinio, cloruro de (met)acriloiloxido-decilo piridinio, cloruro de (met)acriloiloxihexadecilo piridinio y cloruro de (met)acriloiloxidodeciloamonio.

(II) (met)acrilatos bifuncionales incluyen:

di(met)acrilato de etilenglicol, di(met)acrilato de trietilenglicol, di(met)acrilato de propilenglicol, di(met)acrilato de neopentilglicol, di(met)acrilato de 1,6-hexanodiol, di(met)acrilato de 1,10-decanodiol, bisfenol A (met)acrilato de diglicidil (2,2-bis[4-[3-(met)acriloiloxi-2-hidroxipropoxi]fenil]propano, comúnmente conocido como "BisGMA"), 2,2-bis[4-(met)acriloiloxietoxifenil]propano, 2,2-bis[4-(met)acriloiloxipoliétoxifenil]propano, 1,2-bis[3-(met)acriloiloxi-2-hidroxipropoxi]etano, di(met)acrilato de pentaeritritol y dimetacrilato de [2,2,4-trimetilhexametileno bis(2-carbamiloiloxietilo)] (comúnmente conocido como "UDMA").

(III) (met)acrilatos trifuncionales o polifuncional mayor incluyen:

tri(met)acrilato de trimetilolpropano, tri(met)acrilato de trimetiloetano, tri(met)acrilato de tetrametilolmetano, tetra(met)acrilato de pentaeritritol, hexa(met)acrilato de dipentaeritritol, tetrametacrilato de N,N-(2,2,4-trimetilhexametileno)bis[2-(aminocarboxi)propano-1,3-diol] y 1,7-diacriloiloxi-2, 2,6,6-tetraacriloiloximetil-4-oxiheptano.

Para mejorar la adherencia a las estructuras del diente, metales, cerámicas y similares, se prefiere en algunos casos que la composición endurecible de la presente invención contenga, como monómero polimerizable, un monómero funcional para proporcionar la adhesión a estos adherentes.

Como tales monómeros funcionales, por ejemplo, se prefieren monómeros que tienen un grupo ácido fosfórico, tal como dihidrogenofosfato de 2-(met)acriloiloxietilo, dihidrogenofosfato de 10-(met)acriloiloxidecilo y hidrogenofosfato de fenil 2-(met)acriloiloxietilo, y monómeros que tienen un grupo ácido carboxílico, tal como ácido 11-(met)acriloiloxi-1,1-undecanodicarboxílico y ácido 4-(met)acriloiloxietoxicarbonil ftálico porque estos monómeros presentan una excelente adherencia a las estructuras del diente y metales básicos.

Como tales monómeros funcionales, por ejemplo, se prefieren (met)acrilato de 10-mercaptodecilo, 6-(4-vinilbencil-n-propil)amino-1,3,5-triazin-2,4-ditona, un derivado de tiouracilo descrito en el documento JP 10(1998)-1473 A, y un compuesto que contiene un elemento de azufre descrito en el documento en JP 11(1999)-92461 A porque estos monómeros presentan una excelente adhesión a metales preciosos.

Además, como tal monómero funcional, por ejemplo, un agente de acoplamiento silano, tal como γ -metacriloiloxipropiltrimetoxisilano es eficaz en la unión a la cerámicas, porcelanas y resinas compuestas dentales.

El contenido del monómero polimerizable (A) es preferentemente de 8 a 40 % en peso, y más preferentemente del 15 al 35 % en peso, con respecto al peso total de la composición endurecible dental. Cuando el contenido del monómero polimerizable (A) es menor del 8 %, la pasta resultante puede ser demasiado viscosa o demasiado fluida, que puede resultar en pobres propiedades de manipulación de la composición endurecible dental. Cuando el contenido del monómero polimerizable (A) es mayor del 40 % en peso, la carga inorgánica es insuficiente en cantidad, que puede resultar en la composición endurecible dental que proporciona la resistencia mecánica pobre.

Partículas inorgánicas (B)

Como partículas inorgánicas (B) usadas en la presente invención, puede usarse cualquier partícula inorgánica sin limitación en tanto que tengan un índice de refracción de 1,43 a 1,50 y son agregados de finas partículas inorgánicas que tienen un tamaño de partícula promedio primaria de 2 a 50 nm. Cuando el índice de refracción de las partículas inorgánicas (B) es menor de 1,43, las diferencias en el índice de refracción respecto del polímero del monómero polimerizable (A) y respecto de las partículas inorgánicas (B) son demasiado grandes, lo que da como resultado una mala transparencia. Cuando el índice de refracción de las partículas inorgánicas (B) es mayor de 1,50, las diferencias en el índice de refracción respecto del polímero del monómero polimerizable (A) y respecto de las partículas inorgánicas (B) son demasiado pequeñas, lo que da como resultado una mala difusión de la luz. El índice de refracción de las partículas inorgánicas (B) es preferentemente de 1,43 a 1,48, y más preferentemente de 1,43 a 1,46, para facilitar el aumento de las diferencias en el índice de refracción respecto del polímero del monómero polimerizable (A)

y respecto de las partículas inorgánicas (C). Además, es preferible que la diferencia entre el índice de refracción del monómero polimerizable (A) después de la polimerización y el de las partículas inorgánicas (B), es decir, $\{(A) - (B)\}$, sea de 0,05 o más. En este caso, se obtiene una difusión de la luz particularmente excelente. El tamaño de partícula promedio primaria de las partículas inorgánicas (B) es preferentemente de 5 a 35 nm, y más preferentemente de 7 a 20 nm, para facilitar el aumento del número de interfaces entre las partículas inorgánicas (B) y el monómero polimerizable (A), que son los sitios para la refracción y difusión de la luz, y para obtener agregados que tengan la fuerza adecuada. El tamaño de partícula promedio primaria de las partículas inorgánicas (B) puede medirse obteniendo micrografías electrónicas de estas partículas inorgánicas (B) y calculando el valor medio de los diámetros de las 100 partículas primarias seleccionadas al azar.

Si las partículas primarias son partículas no esféricas, se obtienen sus diámetros calculando la media aritmética de la dimensión más larga y más corta de las mismas.

El tamaño de partícula promedio de las partículas inorgánicas (B) no está limitado a cualquier tamaño particular en tanto que las partículas inorgánicas (B) sean agregados que tienen el índice de refracción y el tamaño de partícula primaria anteriormente mencionado. El tamaño de partícula promedio de las partículas inorgánicas (B) es preferentemente de 1,0 a 20 μm , más preferentemente de 2,0 a 15 μm , y de manera particularmente preferente de 3 a 10 μm , para facilitar la obtención de la difusión de la luz y la transparencia del producto endurecido de la composición. Cuando el tamaño medio de la partícula es menor de 1,0 μm , se reduce la función del ajuste de la transmisión de luz. Por lo tanto, tiene que añadirse una cantidad aumentada de las partículas inorgánicas (B), que pueden reducir la difusión de la luz y la transparencia del producto endurecido. Por otra parte, cuando el tamaño medio de la partícula es mayor de 20 μm , la luz se refracta y dispersa con más fuerza, lo que puede reducir la transparencia del producto endurecido. Además, incluso si las partículas inorgánicas (B) son agregados que tienen un tamaño de partícula promedio primaria de 2 a 50 nm, puede reducirse la capacidad de pulido (en particularmente la facilidad de pulido). El tamaño de partícula promedio de las partículas inorgánicas (B) puede obtenerse mediante el método de difracción/dispersión láser. Más específicamente, por ejemplo, puede obtenerse el tamaño de partícula promedio mediante la medición usando una solución acuosa al 0,2% de hexametáfosfato de sodio en forma de un medio de dispersión, con un analizador de la distribución del tamaño de partícula de difracción láser (LALD-2100, fabricado por Shimadzu Corporation).

El área superficial específica y el volumen de poro de las partículas inorgánicas (B) no están limitados a cualesquiera particulares en tanto que las partículas inorgánicas (B) sean agregados que tienen el índice de refracción y tamaño de partícula promedio primaria anteriormente mencionados. Para hacer más fácil la obtención de la difusión de la luz y la transparencia del producto endurecido, el área superficial específica y el volumen de poro son preferentemente de 50 a 400 m^2/g y de 0,05 a 1,5 ml/g, respectivamente. Más preferentemente, el área superficial específica y el volumen de poro son de 100 a 300 m^2/g y de 0,1 a 1,0 ml/g, respectivamente. De manera particularmente preferente, el área superficial específica y el volumen de poro son de 100 a 250 m^2/g y de 0,15 a 0,5 ml/g, respectivamente.

Como material para las partículas inorgánicas (B), puede usarse cualquier material sin limitación en tanto que las partículas inorgánicas (B) satisfagan la relación anteriormente mencionada entre el índice de refracción y el tamaño de partícula promedio primaria. Los ejemplos de dichos materiales incluyen: sílice preparado mediante pirólisis a la llama (por ejemplo, AEROSIL OX 50, AEROSIL Ar 130, AEROSIL Ar 200, etc., fabricado por Japan Aerosil Co., Ltd.); sol de sílice preparado mediante el método en húmedo (por ejemplo, la serie SNOWTEX fabricada por Nissan Chemical Industries, Ltd., y la serie CATALOID, fabricada por JGC Catalysts and Chemicals Ltd.); y partículas de sílice preparadas mediante el método de sol-gel. También pueden usarse materiales compuestos con iones de otros metales en tanto que satisfagan el intervalo de índices de refracción anteriormente mencionado. Los otros metales no están particularmente limitados. Los ejemplos preferibles de dichos metales incluyen Al, Ti, Zr, Sr, Ba, La, Na, K, Ca, y Mg, desde el punto de vista de la facilidad de ajuste del índice de refracción y de la seguridad. Puede añadirse cualquiera de estos metales en forma de una sal de metal soluble en un sol de sílice en el que las partículas de sílice ya se han dispersado. Puede añadirse cualquiera de estos metales durante la síntesis de partículas de sílice para obtener partículas de óxido compuestas.

Como método para producir las partículas inorgánicas (B), puede usarse cualquiera de los siguientes métodos comunes sin limitación alguna, pero el método no está particularmente limitado a los siguientes. El proceso de agregación más fácil es dispersar las partículas primarias en un medio de dispersión y después retirar el medio mediante calentamiento o reducción de la presión. Otro proceso de agregación disponible es el denominado secado por pulverización, en el que se rocía una dispersión de partículas primarias en forma de una fina niebla en una cámara de secado para obtener partículas agregadas desecadas. En el método de agregación anterior, al obtener agregados de mayor tamaño, tienen que llevarse a cabo etapas adicionales, tales como trituración y molienda. El último secado por nebulización es más eficaz debido a que pueden omitirse estas etapas. Un ejemplo de dichas partículas producidas mediante este secado por pulverización es Silica Microbeads, fabricado por JGC Catalysts and Chemicals Ltd.

Después del proceso de agregación, puede someterse a tratamiento térmico a las partículas inorgánicas (B), en caso necesario, para ajustar la cohesión de las partículas o para retirar el agua o las sustancias inorgánicas. La temperatura del tratamiento térmico está en el intervalo de 200°C o más pero de 800°C o menos para muchas composiciones de partículas primarias, aunque no puede determinarse de manera definitiva debido a que las condiciones de tratamiento

óptimas (tales como una temperatura y una duración de tiempo) varían dependiendo de la composición de partículas primarias y el material usado para las mismas. Cuando la temperatura de calcinación es menor de 200°C, tienden a permanecer el agua y las sustancias orgánicas, lo que dificulta la obtención de un producto endurecido que tenga suficiente transparencia. Por otra parte, no es preferible una temperatura de calcinación de más de 800°C debido a que los componentes de la composición a menudo comienzan a cristalizarse, fundirse o sinterizarse a esa temperatura, lo que puede reducir las propiedades de pulido y transparencia del producto endurecido de la composición que contiene las partículas inorgánicas (B). Las condiciones de calcinación más específicas se determinan mediante las siguientes etapas: preparar cargas mediante calcinación a temperaturas en este intervalo en diferentes conjuntos de condiciones, y someter a las cargas a análisis por difracción de polvo de rayos X para confirmar que no se observa una estructura cristalina en las mismas; y además preparar composiciones que contienen estas partículas inorgánicas (B), y medir los grados de suavidad y brillo de las superficies pulidas de los productos endurecidos de las composiciones y medir los grados de transparencia de las mismas. Esto es, cuando el tratamiento térmico de las partículas inorgánicas (B) es insuficiente, es difícil obtener una transparencia suficiente. Cuando el tratamiento térmico es excesivo, la apariencia del producto endurecido no solo se vuelve opaca de un modo no natural, sino que el brillo de la superficie pulida del producto endurecido se reduce de manera significativa. Probablemente, estos fenómenos se atribuyen a las siguientes razones. Cuando las partículas inorgánicas (B) se calientan a una temperatura excesivamente elevada, comienza a cristalizarse una parte de los componentes. Junto con la cristalización, aumenta el índice de refracción de las partículas inorgánicas (B), y la composición que contiene las partículas inorgánicas (B) muestra una blancura no natural, que es diferente a la blancura de los dientes naturales. Además, a medida que aumenta la dureza de las partículas inorgánicas (B), el producto endurecido es más resistente a la abrasión, lo que reduce las propiedades de pulido de la misma.

Las partículas inorgánicas (B) se usan en combinación con el monómero polimerizable (A) para la composición dental endurecible. Por lo tanto, es deseable que se sometan las partículas inorgánicas (B) previamente a tratamiento superficial con un agente de tratamiento superficial para aumentar la afinidad del monómero polimerizable (A), y para aumentar la unión química con el monómero polimerizable (A) para potenciar la fuerza mecánica del producto endurecido de la composición. En el caso donde las partículas inorgánicas (B) se someten a tratamiento superficial, el índice de refracción de las partículas inorgánicas (B) se refiere al índice de refracción después del tratamiento superficial.

Los ejemplos de dichos agentes de tratamiento superficial incluyen al menos un compuesto metálico orgánico seleccionado entre el grupo que consiste en un compuesto orgánico de silicio, un compuesto orgánico de titanio, un compuesto orgánico de circonio, y un compuesto orgánico de aluminio. Cuando se usan dos o más tipos de compuestos de metales orgánicos diferentes, la capa superficial tratada puede prepararse a partir de una mezcla de estos dos o más tipos diferentes de compuestos orgánicos metálicos, o pueden tener una estructura multicapa en la que las dos o más capas de compuesto metálico orgánico diferentes están laminadas.

Un ejemplo del compuesto de silicio orgánico es un compuesto representado por $R^1_nSiX_{4-n}$ (donde R^1 es un grupo hidrocarbano sustituido o sin sustituir que tiene de 1 a 12 átomos de carbono, X es un grupo alcoxi que tiene de 1 a 4 átomos de carbono, un grupo hidroxilo, un átomo de halógeno o un átomo de hidrógeno, y n es un número entero de 0 a 3. Si una pluralidad de R^1 y una pluralidad de X están representados, las R^1 pueden ser las mismas o diferentes las unas de las otras, y las X pueden ser las mismas o diferentes las unas de las otras).

Los ejemplos específicos del compuesto de silicio orgánico incluyen metiltrimetoxisilano, dimetildimetoxisilano, feniltrimetoxisilano, difenildimetoxisilano, metiltrietoxisilano, dimetildietoxisilano, feniltrietoxisilano, difenildietoxisilano, isobutiltrimetoxisilano, viniltrimetoxisilano, viniltrietoxisilano, vinil-tris(β -metoxietoxi)silano, trimetoxisilano de 3,3,3-trifluoropropilo, dimetoxisilano de metil-3,3,3-trifluoropropilo, β -(3,4-epoxiciclohexil)etiltrimetoxisilano, γ -glicidoxipropiltrimetoxisilano, γ -glicidoxipropilmetildietoxisilano, γ -glicidoxipropiltrietoxisilano, γ -metacriloxipropilmetildimetoxisilano, γ -metacriloxipropilmetildietoxisilano, N- β (aminoetil) γ -aminopropilmetildimetoxisilano, N- β (aminoetil) γ -aminopropiltrietoxisilano, N- β (aminoetil) γ -aminopropiltrietoxisilano, γ -aminopropiltrietoxisilano, γ -aminopropiltrietoxisilano, N-fenil- γ -aminopropiltrietoxisilano, γ -mercaptopropiltrimetoxisilano, trimetilsilanol, metiltriclorosilano, metildiclorosilano, dimetildiclorosilano, trimetilclorosilano, feniltriclorosilano, difenildiclorosilano, viniltriclorosilano, trimetilbromosilano, dietilsilano, viniltriacetoxisilano, trimetoxisilano de ω -(met)acriloxialquilo (que tiene de 3 a 12 átomos de carbono entre un grupo (met)acriloxi y un átomo de silicio, por ejemplo, γ -metacriloxipropiltrimetoxisilano, o similar), y trietoxisilano de ω -(met)acriloxialquilo (que tiene de 3 a 12 átomos de carbono entre un grupo (met)acriloxi y un átomo de silicio, por ejemplo, γ -metacriloxipropiltrietoxisilano, o similar).

Entre ellos, un agente de acoplamiento que tiene un grupo funcional que es copolimerizable con el monómero polimerizable (A), por ejemplo, se usan particularmente preferentemente trimetoxisilano de ω -(met)acriloxialquilo (que tiene de 3 a 12 átomos de carbono entre un grupo (met)acriloxi y un átomo de silicio), trietoxisilano de ω -(met)acriloxialquilo (que tiene de 3 a 12 átomos de carbono entre un grupo (met)acriloxi y un átomo de silicio), viniltrimetoxisilano, viniltrietoxisilano, viniltriacetoxisilano, γ -glicidoxipropiltrimetoxisilano o similares.

Los ejemplos del compuesto de titanio orgánico incluyen titanato de tetrametilo, titanato tetrakispropilo, titanato de tetra-n-butilo, dímero de titanato de butilo y titanato de tetra(2-etilhexilo).

Los ejemplos de compuesto de circonio orgánico incluyen isopropóxido de circonio, n-butóxido de circonio, acetilacetato de circonio y acetato de circonio.

5 Los ejemplos del compuesto de aluminio orgánico incluyen acetilacetato de aluminio y un compuesto quelado de una sal de aluminio y un ácido orgánico.

10 Cuando el contenido de las partículas inorgánicas (B) es del 0,1 al 10 % en peso con respecto al peso total de la composición endurecible dental, el producto endurecido resultante muestra difusión de la luz adecuada y transparencia. Cuando el contenido de las partículas inorgánicas (b) es menos del 0,1 % en peso, la fracción de los sitios para la refracción y la dispersión es demasiado pequeño en el producto endurecido y se reduce la función de difundir la luz transmitida. Como resultado, no se obtiene suficiente difusión de la luz, aunque se aumenta la transparencia del producto endurecido. Cuando el contenido es más del 10 % en peso, se obtiene difusión de la luz, pero la fracción de los sitios para la refracción y la dispersión es demasiado grande en el producto endurecido y no se obtiene la suficiente transparencia. A fin de proporcionar difusión de la luz y la transparencia en el producto endurecido de manera equilibrada, el contenido es preferentemente del 0,5 al 8,0 % en peso y más preferentemente del 1,0 al 7,0 % en peso.

Partículas inorgánicas (C)

20 Como las partículas inorgánicas (C) utilizados en la presente invención, las partículas inorgánicas se pueden utilizar sin ninguna limitación siempre que tienen un índice de refracción de 1,52 a 1,58. Cuando el índice de refracción de las partículas inorgánicas (C) es inferior a 1,52, la diferencia de índice de refracción del polímero del monómero polimerizable (A) tiende a ser demasiado grande y la diferencia en el índice de refracción de las partículas inorgánicas (b) tiende a ser demasiado pequeño, lo que resulta en mala difusión de la luz y la transparencia. Cuando el índice de refracción de las partículas inorgánicas (C) es más de 1,58, las diferencias en el índice de refracción a partir del polímero del monómero polimerizable (A) y las partículas inorgánicas (B) tienden a ser demasiado grande, lo que resulta en un blanco y producto endurecido opaco con poca transparencia. El índice de refracción de las partículas inorgánicas (C) es preferiblemente de 1,525 a 1,58, y más preferiblemente 1,53 a 1,58, para hacer que sea más fácil para reducir la diferencia en el índice de refracción del polímero del monómero polimerizable (A) y para aumentar la diferencia en índice de refracción de las partículas inorgánicas (B). Además, es preferible que la diferencia entre el índice de refracción del monómero polimerizable (A) después de la polimerización y el de las partículas inorgánicas sea 0,03 o menos como un valor absoluto. En este caso, se obtiene particularmente excelente transparencia.

35 Preferentemente, las partículas inorgánicas (C) contienen partículas inorgánicas no agregadas (IC) que tienen un tamaño de partícula promedio de 0,1 a 1,0 μm , para que sea más fácil de obtener la resistencia mecánica y capacidad de pulido del producto endurecido de la composición, así como las propiedades de manipulación de la pasta. Cuando el tamaño de partícula es inferior a 0,1 μm , se obtiene una capacidad de pulido satisfactoria del producto endurecido, pero la pasta tiende a ser pegajosa. Además, es difícil aumentar el contenido de carga, que puede reducir la resistencia mecánica. Cuando el tamaño de partícula promedio es más de 1,0 μm , se obtiene una resistencia mecánica suficiente, pero la capacidad de pulido puede disminuir. El tamaño de partícula promedio de las partículas inorgánicas (C-I) es más preferentemente de 0,2 a 0,7 μm , y aún más preferentemente de 0,2 a 0,4 μm , desde los puntos de vista de la resistencia mecánica y capacidad de pulido del producto endurecido, así como las propiedades de manipulación de la pasta. El tamaño de partícula promedio de las partículas inorgánicas (C-I) puede obtenerse por el método de difracción láser/dispersión. Más específicamente, por ejemplo, el tamaño de partícula promedio puede obtenerse a través de la medición con una solución acuosa al 0,2% de hexametáfosfato sódico como medio de dispersión, con un analizador de difracción de láser de distribución del tamaño de partícula (SALD-2100, fabricado por Shimadzu Corporation).

50 Como las partículas inorgánicas (C-I), cualquiera de las partículas inorgánicas pueden usarse sin ninguna limitación siempre que sean partículas no agregadas inorgánicas que tengan un índice de refracción de 1,52 a 1,58 y un tamaño de partícula promedio de 0,1 a 1,0 μm . Los ejemplos de las partículas inorgánicas incluyen: diversos tipos de polvos de vidrio [que contienen sílice como componente principal y que contienen además un óxido de un metal pesado, boro, aluminio, y similares, si es necesario: por ejemplo, polvos de vidrio para uso dental, tales como e-vidrio, vidrio de boroaluminosilicato de estroncio (Ray-Sorb T-3000, fabricado por Kimble, y GM 27884 y 8235, fabricado por Schott), vidrio de silicato de bario (Ray-Sorb T-2000, fabricado por Kimble) y vitrocerámicas de lantano (GM 31684, fabricado por Schott)]; diversos tipos de cerámica; óxidos compuestos, tales como sílice-titania y sílice-circonia; caolín; minerales de arcilla (por ejemplo, montmorillonita); mica; fluoruro de iterbio; fluoruro de itrio; y similares. Cualquiera de las partículas inorgánicas anteriormente mencionadas pueden usarse solos o como una mezcla de dos o más tipos en esto. Entre las partículas inorgánicas anteriores, los que contienen sílice como componente principal se usan preferentemente como las partículas inorgánicas (C-I) de la composición endurecible dental de la presente invención.

65 Con el fin de proporcionar buenas propiedades de manipulación a la pasta, además de suficiente capacidad de pulido y las propiedades físicas mecánicas, se prefiere que las partículas inorgánicas (C) contengan partículas inorgánicas (C-II) que tienen un tamaño de partícula promedio de 1 a 20 μm , además a las partículas inorgánicas anteriormente mencionadas (IC). Las partículas inorgánicas (C-II) son agregados que contienen partículas finas a base de sílice con un tamaño de partícula medio de 2 a 50 nm y un óxido de al menos un metal pesado. El tamaño de partícula promedio

de las partículas finas a base de sílice contenidas en las partículas inorgánicas (C-II) es preferentemente de 5 a 35 nm, y más preferentemente de 7 a 20 nm, para que sea más fácil obtener agregados que tienen una resistencia adecuada. El tamaño de partícula promedio de las partículas finas a base de sílice contenidas en las partículas inorgánicas (C-II) puede medirse tomando micrografías electrónicas de estas partículas finas a base de sílice y calculando el valor promedio medio de los diámetros de las 100 partículas finas a base de sílice seleccionadas aleatoriamente. Si las partículas finas a base de sílice son partículas no esféricas, sus diámetros se obtienen mediante el cálculo de la media aritmética de las dimensiones largos y más cortos de los mismos.

El tamaño de partícula promedio de las partículas inorgánicas (C-II) es preferentemente de 1,0 a 20 μm , más preferentemente de 2,0 a 15 μm , y en particular preferentemente de 3 a 10 μm . Cuando el tamaño de la partícula promedio es inferior a 1,0 μm , el contenido de la carga que tiene un área superficial específica grande y un tamaño de partícula pequeño es alta, lo que puede inhibir el efecto de mejorar las propiedades de manipulación. Cuando el tamaño de partícula promedio es más de 20 μm , la capacidad para ser pulido (en particular la facilidad de pulido) puede disminuir. El tamaño de partícula promedio de las partículas inorgánicas (C-II) puede obtenerse por el método de difracción láser/dispersión. Más específicamente, por ejemplo, el tamaño de partícula promedio de partícula puede obtenerse a través de la medición con una solución acuosa al 0,2 % de hexametáfosfato sódico como medio de dispersión, con un analizador de distribución del tamaño de partícula mediante difracción por láser (SALD-2100, fabricado por Shimadzu Corporation).

La proporción de peso entre las partículas inorgánicas (C-I) y las partículas inorgánicas (C-II) es preferentemente de 1:4 a 4:1, y más preferentemente de 1:3 a 3:1, para que sea más fácil de obtener mejores propiedades de la pasta, tales como la difusión y la pegajosidad de la pasta y para obtener una pasta más fácil de cubrir.

Como las partículas inorgánicas (C-II), las partículas pueden usarse sin ninguna limitación, siempre y cuando son agregados que contienen partículas finas a base de sílice con un tamaño de partícula promedio de 2 a 50 nm y un óxido de al menos un metal pesado, y tienen un índice de refracción de 1,52 a 1,58 y un tamaño de partícula promedio de 1 a 20 μm . Como tales partículas, los agregados producidos mediante el uso de materiales compuestos entre sol.de sílice disponibles en el mercado (por ejemplo, SNOWTEX series, fabricado por Nissan Chemical Industries, Ltd., y CATALOID series, fabricados por JGC Catalysts and Chemicals Ltd.), partículas de sílice producidas por el método sol-gel, o similares y otros los iones de metales pesados pueden ser usados. Los metales pesados no están particularmente limitados. Los ejemplos preferidos de tales metales pesados incluyen Al, Ti, Zr, Sr, Ba, La, Y, Yb, etc., desde los puntos de vista de la facilidad de ajustar el índice de refracción y la seguridad. Cualquiera de estos metales pesados pueden añadirse como una sal de metal soluble en una sol. de sílice en la que ya se han dispersado partículas a base de sílice. Cualquiera de estos metales pesados también puede añadirse durante la síntesis de partículas a base de sílice para obtener partículas de óxido de material compuesto. Alternativamente, los agregados producidos a partir de una dispersión de partículas inorgánicas con una estructura de red de la cadena o en el que una pluralidad de partículas finas a base de sílice están conectados a través de revestimientos de óxido de compuestos que contienen al menos de Si, Zr y O pueden ser utilizados. A medida que el proceso de agregación de las partículas inorgánicas (C-II), el mismo proceso de agregación que el de las partículas inorgánicas (B) mencionados anteriormente, pueden emplearse sin ninguna limitación.

Las partículas inorgánicas anteriormente mencionadas (C) se usan en combinación con el monómero polimerizable (A) para la composición endurecible dental. Por lo tanto, es deseable que las partículas inorgánicas (C) se sometan previamente a tratamiento superficial con un agente de tratamiento superficial para mejorar la afinidad por el monómero polimerizable (A), y para aumentar la unión química con el monómero polimerizable (A) con el fin de mejorar la resistencia mecánica del producto endurecido. Como método de tratamiento superficial, puede usarse el mismo método que el de las partículas inorgánicas (B) mencionados anteriormente sin ninguna limitación. En el caso en el que las partículas inorgánicas (C) se someten a un tratamiento superficial, el índice de refracción de las partículas inorgánicas (C) se refiere al índice de refracción después del tratamiento superficial.

El contenido de las partículas inorgánicas (C) es preferentemente del 59,9 al 91,9 % en peso, y más preferentemente del 64,9 al 84,9 % en peso, con respecto al peso total de la composición endurecible dental. Cuando el contenido de las partículas inorgánicas (C) es menor que 59,9 % en peso, la carga inorgánica es insuficiente en cantidad, que puede dar como resultado en la composición endurecible dental que proporciona la resistencia mecánica pobre. Cuando el contenido de las partículas inorgánicas (C) es más del 91,9 % en peso, la pasta resultante puede ser demasiado viscosa o demasiado fluida, lo que puede dar como resultado pobres propiedades de manipulación de la composición endurecible dental.

Partículas ultrafinas inorgánicas (D)

La composición endurecible dental de la presente invención puede contener partículas ultrafinas inorgánica (D) además de las partículas inorgánicas (B) y las partículas inorgánicas (C), para mejorar las propiedades de manipulación de los mismos como una pasta. A medida que las partículas ultrafinas inorgánicas (D), las partículas ultrafinas inorgánicas conocidos que se usan en composiciones endurecibles dentales se usan sin ninguna limitación. Los ejemplos preferidos de las partículas ultrafinas inorgánicas (D) incluyen partículas de óxidos inorgánicos tales como sílice, alúmina, titanía y circonia, las partículas de óxidos compuestos de cualquiera de estos óxidos, y las

partículas de fosfato cálcico, hidroxapatita, fluoruro de itrio, y el fluoruro de iterbio. Preferentemente, las partículas ultrafinas inorgánicas (D) son partículas de sílice, alúmina, titanía, o similar preparado por pirólisis de llama, y los ejemplos del mismo se incluyen los productos fabricados por Japan Aerosil Co., Ltd. bajo el nombre comercial de Aerosil, Aerioxide Alu C, Aerioxide TiO₂ P 25, Aerioxide TiO₂ P 25S y VP Zirconium Oxide 3-YSZ PH.

5 El tamaño de partícula promedio de las partículas ultrafinas inorgánicas (D) es preferentemente de 5 a 50 nm, y más preferentemente de 10 a 40 nm. El tamaño de partícula promedio de las partículas ultrafinas inorgánicas (D) puede medirse tomando micrografías electrónicas de estas partículas ultrafinas (D) y calculando el valor promedio de los diámetros de las 100 partículas ultrafinas seleccionadas aleatoriamente. Si las partículas ultrafinas son partículas no esféricas, sus diámetros se obtienen mediante el cálculo de la media aritmética de las dimensiones más cortas y más largas de los mismos.

15 Al igual que las partículas inorgánicas (C), las partículas ultrafinas inorgánicas (D) se usan en combinación con el monómero polimerizable (A) para la composición endurecible dental. Por lo tanto, es deseable que las partículas ultrafinas inorgánicas (D) se sometan previamente a tratamiento superficial con un agente de tratamiento superficial para mejorar la afinidad por el monómero polimerizable (A), y para aumentar la unión química con el monómero polimerizable (A) y para incrementar la resistencia mecánica del producto endurecido. Como método de tratamiento superficial; el mismo método que el de las partículas inorgánicas (B) mencionados anteriormente pueden usarse sin ningún tipo de limitación.

20 El contenido de las partículas ultrafinas inorgánicas (D) es preferentemente del 1 al 10 % en peso y más preferentemente del 1 al 5 % en peso, con respecto al peso total de la composición endurecible dental.

25 Se prefiere que la composición endurecible dental de la presente invención contenga además un iniciador de la polimerización para facilitar la polimerización y el endurecimiento. El iniciador de la polimerización puede seleccionarse entre iniciadores de la polimerización usados comúnmente en el campo industrial. Entre ellos, se usan preferentemente los iniciadores de la polimerización usados para aplicaciones dentales. Particularmente, se usan solo iniciadores de la fotopolimerización e iniciadores de la polimerización química, o dos o más de ellos se usan en una combinación adecuada.

30 Los ejemplos del iniciador de la fotopolimerización incluyen óxidos de (bis)acilfosfina, óxidos de acilfosfina solubles en agua, tioantonas o sales de amonio cuaternarias de tioantonas, cetales, α -dicetonas, compuestos de éter alquílico de benzoína y compuestos de α -amino cetona.

35 Entre estos óxidos de (bis)acilfosfina usados como el iniciador de la fotopolimerización, los ejemplos de los óxidos de acilfosfina incluyen óxido de 2,4,6-trimetilbenzoildifenilfosfina, óxido de 2,6-dimetoxibenzoildifenilfosfina, óxido de 2,6-diclorobenzoildifenilfosfina, óxido de 2,4,6-trimetilbenzoilmetoxifenilfosfina, óxido de 2,4,6-trimetilbenzoiletoxifenilfosfina, óxido de 2,3,5,6-tetrametilbenzoilbifenilfosfina y di-(2,6-dimetil-fenil)fosfonato de benzoílo. Los ejemplos de los óxidos de bisacilfosfina incluyen óxido de bis-(2,6-diclorobenzoil)fenilfosfina, óxido de bis-(2,6-diclorobenzoil)-2,5-dimetilfenilfosfina, óxido de bis-(2,6-diclorobenzoil)-4-propilfenilfosfina, óxido de bis-(2,6-diclorobenzoil)-1-naftilfosfina, óxido de bis-(2,6-dimetoxibenzoil)fenilfosfina, óxido de bis-(2,6-dimetoxibenzoil)-2,4,4-trimetilpentilfosfina, óxido de bis-(2,6-dimetoxibenzoil)-2,5-dimetilfenilfosfina, óxido de bis-(2,4,6-trimetilbenzoil)fenilfosfina y óxido de (2,5,6-trimetilbenzoil)-2,4,4-trimetilpentilfosfina.

45 Preferentemente, los óxidos de acilfosfina solubles en agua usados como el iniciador de la fotopolimerización tienen iones de metal alcalino, iones de metal alcalinotérreo, iones piridinio o iones amonio en las moléculas de óxido de acilfosfina. Por ejemplo, los óxidos de acilfosfina solubles en agua pueden sintetizarse mediante el método divulgado en el documento EP 0009348 B1 o JP 57(1982)- 197289 A.

50 Los ejemplos específicos de los óxidos de acilfosfina solubles en agua anteriormente mencionados incluyen monometilacetilfosfonato sódico, monometil(1-oxopropil)fosfonato sódico, monometilbenzoilfosfonato sódico, monometil(1-oxobutil)fosfonato sódico, monometil(2-metil-1-oxopropil)fosfonato sódico, acetilfosfonato sódico, monometilacetilfosfonato sódico, acetilmetilfosfonato sódico, sal sódica de metil-4-(hidroximatoxfosfinil)-4-oxobutanoato, sal monosódica de metil-4-oxofosfonobutanoato, sal sódica de acetilfenilfosfinato, 55 (1-oxopropil)pentilfosfinato sódico, sal sódica de metil-4-(hidroxipentilfosfinil)-4-oxobutanoato, acetilpentilfosfinato sódico, acetilfenilfosfinato sódico, metil(1,1-dimetil)metilfosfinato sódico, (1,1-dietoxietil)metilfosfinato sódico, (1,1-dietoxietil)metilfosfinato sódico, sal de litio de metil-4-(hidroximetilfosfinil)-4-oxobutanoato, sal de dilitio del ácido 4-(hidroximetilfosfinil)-4-oxobutanoico, sal sódica de metil(2-metil-1,3-dioxolan-2-il)fosfinato, sal sódica de metil(2-metil-1,3-tiazolidin-2-il)fosfonito, sal sódica de (2-metilperhidro-1,3-diazin-2-il)fosfonito, sal sódica de acetilfosfinato, sal sódica de (1,1-dietoxietil)fosfonito, sal sódica de (1,1-dietoxietil)metilfosfonito, sal sódica de metil(2-metiloxatiolano-2-il)fosfinato, sal sódica de metil(2,4,5-trimetil-1,3-dioxolan-2-il)fosfinato, sal sódica de metil(1,1-propoxietil)fosfinato, sal sódica de (1-metoxivinil)metilfosfinato, sal sódica de (1-etiltiovinil)metilfosfinato, sal sódica de metil(2-metilperhidro-1,3-diazin-2-il)fosfinato, sal sódica de metil(2-metilperhidro-1,3-tiazin-2-il)fosfinato, sal sódica de metil(2-metil-1,3-diazolidin-2-il)fosfinato, sal sódica de metil(2-metil-1,3-tiazolidin-2-il)fosfinato, sal sódica de (2,2-diciano-1-metiletinil)fosfinato, sal sódica de acetilmetilfosfinato oxima, sal sódica de acetilmetilfosfinato-O-benciloxima, sal sódica de 1-[(N-etoxiimino)etil]metilfosfinato, sal sódica de

metil(1-feniliminoetil)fosfinato, sal sódica de metil(1-fenilhidrazonaetil)fosfinato, sal sódica de [1-(2,4-dinitrofenilhidrazono)etil]metilfosfinato, sal sódica de acetilmetilfosfinato semicarbazona, sal sódica de (1-ciano-1-hidroxi)etilmetilfosfinato, sal sódica de (dimetoximetil)metilfosfinato, sal sódica de formilmetilfosfinato, sal sódica de (1,1-dimetoxipropil)metilfosfinato, sal sódica de metil(1-oxopropil)fosfinato, sal dodecilguanidina de (1,1-dimetoxipropil)metilfosfinato, sal isopropilamina de (1,1-dimetoxipropil)metilfosfinato, sal sódica de acetilmetilfosfinato tiosemicarbazona, (1,1-dimetoxietil)-metilfosfinato de 1,3,5-tributil-4-metilamino-1,2,4-triazolio, (1,1-dimetoxietil)-metilfosfinato de 1-butil-4-butilaminometilamino-3,5-dipropil-1,2,4-triazolio, sal sódica de óxido de 2,4,6-trimetilbenzoilfenilfosfina, sal potásica de óxido de 2,4,6-trimetilbenzoilfenilfosfina y sal de amonio de óxido de 2,4,6-trimetilbenzoilfenilfosfina. Además, los ejemplos de los mismos también incluyen compuestos descritos en el documento JP 2000-159621 A.

Entre estos óxidos de (bis)acilfosfina y óxidos de acilfosfina solubles en agua, son particularmente preferidos el óxido de 2,4,6-trimetilbenzoildifenilfosfina, óxido de 2,4,6-trimetilbenzoilmetoxifenilfosfina, óxido de bis(2,4,6-trimetilbenzoil)fenilfosfina y sal sódica del óxido 2,4,6-trimetilbenzoilfenilfosfina.

Los ejemplos de tioxantonas o las sales de amonio cuaternario de tioxantonas que se usan como los iniciadores de la fotopolimerización mencionada anteriormente incluyen tioxantona, 2-clorotioxanten-9-ona, cloruro de 2-hidroxi-3-(9-oxi-9H-tioxanten-4-iloxi)-N,N,N-trimetil-propanoaminio, cloruro de 2-hidroxi-3-(1-metil-9-oxi-9H-tioxanten-4-iloxi)-N,N,N-trimetil-propanoaminio, cloruro de 2-hidroxi-3-(9-oxo-9H-tioxanten-2-iloxi)-N,N,N-trimetil-propanoaminio, cloruro de 2-hidroxi-3-(3,4-dimetil-9-oxo-9H-tioxanten-2-iloxi)-N,N,N-trimetil-1-propanoaminio, cloruro de 2-hidroxi-3-(3,4-dimetil-9H-tioxanten-2-iloxi)-N,N,N-trimetil-1-propanoaminio y cloruro de 2-hidroxi-3-(1,3,4-trimetil-9-oxo-9H-tioxanten-2-iloxi)-N,N,N-trimetil-1-propanoaminio.

Entre las tioxantonas o las sales de amonio cuaternarias de tioxantonas, se prefiere particularmente una tioxantona, 2-clorotioxanten-9-ona, y una sal de amonio particularmente preferida es cloruro de 2-hidroxi-3-(3,4-dimetil-9H-tioxanten-2-iloxi)-N,N,N-trimetil-1-propanoaminio.

Los ejemplos de los cetales usados como el iniciador de fotopolimerización anteriormente mencionado incluyen bencil dimetil cetal y bencil dietil cetal.

Los ejemplos de las α -dicetonas usadas como el iniciador de fotopolimerización incluyen diacetilo, dibencilo, alcanforquinona, 2,3-pentadiona, 2,3-octadiona, 9,10-fenantrenequinona, 4,4'-oxibencilo y acenaftenoquinona. Entre estos, la alcanforquinona es particularmente preferida desde el punto de vista que tiene la longitud de onda de máxima absorción en el intervalo de luz visible.

Los ejemplos de los alquil éteres de benzoína usados como el iniciador de fotopolimerización anteriormente mencionado incluyen metil éter de benzoína, etil éter de benzoína, isopropil éter de benzoína e isobutil éter de benzoína.

Los ejemplos de las α -aminocetonas usadas como el iniciador de fotopolimerización anteriormente mencionado incluyen 2-metil-1-[4-(metiltio)fenil]-2-morfolinopropan-1-ona.

Preferentemente, entre estos iniciadores de polimerización, al menos uno se selecciona entre el grupo que consiste en óxidos de (bis)acilfosfina, sales de los mismos, y se usan α -dicetonas. Esto hace que sea posible obtener una composición que tiene una excelente capacidad de fotopolimerización en los intervalos visible y ultravioleta cercano y la capacidad de polimerización foto suficientemente alta, independientemente de la fuente de luz entre una lámpara halógena, un diodo emisor de luz (LED) y se usa la lámpara de xenón.

Entre los iniciadores de de polimerización usados en la presente invención, un iniciador de polimerización química que se usa preferentemente es peróxido orgánico. El peróxido orgánico usado como el iniciador de polimerización químico anteriormente mencionado no está particularmente limitado y puede usarse uno conocido. Los ejemplos de peróxidos orgánicos típicos incluyen peróxido de cetona, hidroperóxido, peróxido de diacilo, peróxido de dialquilo, peroxiacetal, peroxiéster y peroxidicarbonato.

Los ejemplos del peróxido de cetona usados como el iniciador de polimerización químico mencionado anteriormente incluyen peróxido de etil cetona, peróxido de metil isobutil cetona, peróxido de metilciclohexanona y peróxido de ciclohexanona.

Los ejemplos del hidroperóxido usado como el iniciador de polimerización mencionado anteriormente incluyen 2,5-dimetilhexano-2,5-dihidroperóxido, hidroperóxido de diisopropilbenceno, hidroperóxido de cumeno y hidroperóxido de t-butilo.

Los ejemplos del peróxido de diacilo usado como el iniciador de polimerización química mencionado anteriormente incluyen peróxido de acetilo, peróxido de isobutirilo, peróxido de benzoilo, peróxido de decanoilo, peróxido de 3,5,5-trimetilhexanoilo, peróxido de 2,4-diclorobenzoilo y peróxido de lauroilo.

Los ejemplos del peróxido de dialquilo usado como el iniciador de polimerización químico mencionado anteriormente

incluyen peróxido de di-t-butilo, peróxido de dicumilo, peróxido de t-butilcumilo, 2,5-dimetil-2,5-di(t-butilperoxi)hexano, 1,3-bis(t-butilperoxiisopropil)benceno y 2,5-dimetil-2,5-di(t-butilperoxi)-3-hexina.

5 Los ejemplos del peroxicetal usado como el iniciador de polimerización químico mencionado anteriormente incluyen 1,1-bis(t-butilperoxi)-3,3,5-trimetilciclohexano, 1,1-bis(t-butilperoxi)ciclohexano, 2,2-bis(t-butilperoxi)butano, 2,2-bis(t-butilperoxi)octano y éster n-butílico del ácido 4,4-bis(t-butilperoxi)valérico.

10 Los ejemplos del peroxiéster usados como el iniciador de polimerización químico mencionado anteriormente incluyen peroxineodecanoato de α -cumilo, peroxineodecanoato de t-butilo, peroxipivarato de t-butilo, hexanoato de 2,2,4-trimetilpentilperoxi-2-etilo, hexanoato de t-amilperoxi-2-etilo, hexanoato de t-butilperoxi-2-etilo, isoftalato de di-t-butilperoxi, hexahidrotereftalato de di-t-butilperoxi, hexanoato de t-butilperoxi-3,3,5-trimetilo, acetato de t-butilperoxi, benzoato de t-butilperoxi y ácido t-butilperoximaleico.

15 Los ejemplos del peroxidicarbonato usado como el iniciador de polimerización químico mencionado anteriormente incluyen peroxidicarbonato de di-3-metoxi, peroxidicarbonato de di-2-etilhexilo, bis(4-t-butilciclohexil) peroxidicarbonato, peroxidicarbonato de diisopropilo, peroxidicarbonato de di-n-propilo, peroxidicarbonato de di-2-etoxietilo y peroxidicarbonato de dialilo.

20 Entre estos peróxidos orgánicos, se usan preferentemente peróxidos de diacilo desde el punto de vista de un equilibrio global de la seguridad, la estabilidad de almacenamiento, y la capacidad de la producción de radicales, y entre estos, el peróxido de benzoilo se usa de forma especialmente preferente.

25 El contenido del iniciador de polimerización usado en la presente invención no está particularmente limitado. Sin embargo, desde el punto de vista de, por ejemplo, la capacidad de endurecido de la composición resultante, se prefiere que de 0,01 a 10 partes en peso del iniciador de polimerización estén contenidos por 100 partes en peso del monómero polimerizable (A), y es más preferible que de 0,1 a 5 partes en peso de iniciador de la polimerización estén contenidos. Cuando el contenido del iniciador de polimerización es menor que 0,01 partes en peso, la polimerización no puede proceder suficientemente y por lo tanto la resistencia mecánica puede reducirse. Por lo tanto, el contenido es más preferentemente al menos 0,1 partes en peso. Por otro lado, cuando el contenido del iniciador de polimerización es superior a 10 partes en peso, en el caso en el que el iniciador de la polimerización en sí tiene un rendimiento bajo de polimerización, no puede obtenerse suficiente resistencia mecánica y, además, puede producirse precipitación a partir de la composición. Por lo tanto, el contenido es más preferentemente de 5 partes en peso o menos.

35 En una realización preferida, se usa un acelerador de la polimerización. Los ejemplos del acelerador de la polimerización usado en la presente invención incluyen aminas, ácidos sulfínicos y sales de los mismos, aldehídos y compuestos tioles.

40 Las aminas usadas como acelerador de la polimerización pueden clasificarse en aminas alifáticas y aminas aromáticas. Los ejemplos de aminas alifáticas incluyen: aminas alifáticas primarias, tales como n-butilamina, n-hexilamina y n-octilamina; aminas alifáticas secundarias, tales como diisopropilamina, dibutilamina y N-metildietanolamina; y aminas alifáticas terciarias, tales como N-metildietanolamina, N-etildietanolamina, N-n-butildietanolamina, N-laurildietanolamina, metacrilato de 2-(dimetilamino)etilo, dimetacrilato de N-metildietanolamina, dimetacrilato de N-etildietanolamina, monometacrilato de trietanolamina, dimetacrilato de trietanolamina, trimetacrilato de trietanolamina, trietanolamina, trimetilamina, trietilamina y tributilamina. Entre estas, se prefieren las aminas alifáticas terciarias desde el punto de vista del endurecimiento y la estabilidad en el almacenamiento de la composición, y de manera particular se usan más preferentemente, N-metildietanolamina y trietanolamina.

50 Los ejemplos de aminas aromáticas incluyen N,N-bis(2-hidroxietyl)-3,5-dimetilanilina, N,N-di(2-hidroxietyl)-p-toluidina, N,N-bis(2-hidroxietyl)-3,4-dimetilanilina, N,N-bis(2-hidroxietyl)-4-etilanilina, N,N-bis(2-hidroxietyl)-4-isopropilanilina, N,N-bis(2-hidroxietyl)-4-t-butilanilina, N,N-bis(2-hidroxietyl)-3,5-di-isopropilanilina, N,N-bis(2-hidroxietyl)-3,5-di-t-butilanilina, N,N-dimetilanilina, N,N-dimetil-p-toluidina, N,N-dimetil-m-toluidina, N,N-dietil-p-toluidina, N,N-dimetil-3,5-dimetilanilina, N,N-dimetil-3,4-dimetilanilina, N,N-dimetil-4-etilanilina, N,N-dimetil-4-isopropilanilina, N,N-dimetil-4-t-butilanilina, N,N-dimetil-3,5-di-t-butilanilina, éster etílico del ácido 4-N,N-dimetilaminobenzoico, éster metílico del ácido 4-N,N-dimetilaminobenzoico, éster n-butoxiético del ácido N,N-dimetilaminobenzoico, éster 2-(metacrililoiloxi)etílico del ácido 4-N,N-dimetilaminobenzoico, 4-N,N-dimetilaminobenzofenona y 4-dimetilaminobenzoato de butilo. Entre estas, al menos una se selecciona entre el grupo que consiste en N,N-di(2-hidroxietyl)-p-toluidina, éster etílico del ácido 4-N,N-dimetilaminobenzoico, éster n-butoxiético del ácido N,N-dimetilaminobenzoico y se usa preferentemente 4-N,N-dimetilaminobenzofenona desde el punto de vista de ser capaz de proporcionar a la composición una excelente capacidad de endurecido.

65 Los ejemplos del ácido sulfínico o sal del mismo usado como el acelerador de la polimerización incluyen ácido p-toluenosulfínico, p-toluenosulfinato sódico, p-toluenosulfinato potásico, p-toluenosulfinato de litio, p-toluenosulfinato de calcio, ácido benzenosulfínico, benzenosulfinato sódico, benzenosulfinato potásico, benzenosulfinato de litio, benzenosulfinato de calcio, ácido 2,4,6-trimetilbencenosulfínico, 2,4,6-trimetilbencenosulfinato sódico, 2,4,6-trimetilbencenosulfinato potásico, 2,4,6-trimetilbencenosulfinato de litio, 2,4,6-trimetilbencenosulfinato de calcio,

ácido 2,4,6-trietilbencenosulfínico, 2,4,6-trietilbencenosulfinato sódico, 2,4,6-trietilbencenosulfinato potásico, 2,4,6-trietilbencenosulfinato de litio, 2,4,6-trietilbencenosulfinato de calcio, ácido 2,4,6-triisopropilbencenosulfínico, 2,4,6-triisopropilbencenosulfinato sódico, 2,4,6-triisopropilbencenosulfinato potásico, 2,4,6-triisopropilbencenosulfinato de litio y 2,4,6-triisopropilbencenosulfinato de calcio. Son particularmente preferidos bencenosulfinato sódico, p-toluenosulfinato sódico y 2,4,6-triisopropilbencenosulfinato sódico.

Los ejemplos de aldehídos usados como el acelerador de la polimerización incluyen derivados de tereftalaldehído y benzaldehído. Los ejemplos del derivado de benzaldehído incluyen dimetilaminobenzaldehído, p-metiloxybenzaldehído, p-etiloxibenzaldehído y p-n-octiloxibenzaldehído. Entre estos, desde el punto de vista del endurecimiento, se usa preferentemente p-n-octiloxibenzaldehído.

Los ejemplos del compuesto tiol usado como acelerador de la polimerización incluyen 3-mercaptopropiltrimetoxisilano, 2-mercaptobenzoxazol, decanotiol y ácido tiobenzoico.

El contenido del acelerador de polimerización usado en la presente invención no está particularmente limitado. Sin embargo, desde el punto de vista de, por ejemplo, la capacidad de endurecimiento de la composición resultante, se prefiere que de 0,001 a 10 partes en peso de acelerador de polimerización estén contenidos por 100 partes en peso del componente de monómero polimerizable (A), y es más preferible que de 0,001 a 5 partes en peso del acelerador de la polimerización estén contenidos. Cuando el contenido del acelerador de polimerización es menor que 0,001 parte en peso, la polimerización no puede proceder suficientemente y la resistencia mecánica puede reducirse. Por lo tanto, el contenido es más preferentemente de al menos 0,05 partes en peso. Por otro lado, cuando el contenido del acelerador de polimerización es superior a 10 partes en peso, en el caso en el que el iniciador de la polimerización en sí tiene un rendimiento bajo de polimerización, no puede obtenerse suficientemente alta resistencia mecánica. Por lo tanto, el contenido es más preferentemente 5 partes en peso o menos.

A la composición endurecible dental de la presente invención, pueden añadirse de acuerdo el uso previsto, un ajustador de pH, un absorbente de ultravioleta, un antioxidante, un inhibidor de la polimerización, un colorante, un agente antibacteriano, un agente de contraste de rayos X, un agente espesante, un agente fluorescente o similares.

Por ejemplo, cuando se espera que la superficie endurecida tenga una propiedad de liberación sostenida en un ión flúor, una carga de liberación sostenida en un ión flúor, tal como un vidrio de fluoroaluminosilicato, fluoruro de calcio, fluoruro sódico o también puede añadirse monofluorofosfato sódico.

Cuando se espera que tenga una propiedad antibacteriana, por ejemplo, puede añadirse un tensioactivo que tiene una actividad antibacteriana, tal como cloruro de cetilpiridinio o bromuro 12-(met)acriloloxidodecilpiridinio o un óxido de titanio fotocatalítico.

De acuerdo con la composición endurecible dental de la presente invención que contiene el monómero polimerizable (A) que muestra un índice de refracción en un intervalo específico después de la polimerización, las partículas inorgánicas (B) que tienen un tamaño de partícula primaria medio en un intervalo específico y un índice de refracción en un intervalo específico, y las partículas inorgánicas (C) que tiene un índice de refracción en un intervalo específico diferente de la de las partículas inorgánicas (b), el producto endurecido resultante muestra excelente difusión de la luz y la transparencia de una manera equilibrada. El uso de estos dos tipos de partículas inorgánicas hace que sea posible la obtención de mayor resistencia mecánica, sin perjudicar la suavidad de la superficie y el brillo después de pulir y la retención de la suavidad y brillo. Además, el producto endurecido tiene una alta suavidad de la superficie y el brillo después de pulir y la retención de la suavidad y brillo, y por lo tanto, el material dental que comprende la composición endurecible dental de la presente invención ofrece una buena apariencia estética. Además, la composición endurecible dental de la presente invención tiene buenas propiedades de manipulación, así como la fluidez apropiada y la propiedad de formación como una pasta, y la adhesión a los instrumentos dentales y pegajosidad se reducen. Es decir, la composición endurecible dental es muy fácil de manejar.

La composición endurecible de la presente invención puede usarse adecuadamente en una manera convencional como materiales dentales, por ejemplo, resinas compuestas dentales, tales como materiales de relleno de compuesto dental, los materiales de la corona dental, y materiales de fijación, adhesivos dentales, tales como adhesivos de ortodoncia, recubrimiento cavidad adhesivos y materiales de sellado de fisuras dentales, materiales de prótesis, materiales de acondicionamiento de tejidos para bases de dentaduras postizas, selladores de fisuras, materiales de recubrimiento que se aplicarán a las superficies dentales y prótesis dentales, materiales de acristalamiento de superficie, y lacas dentales. El producto endurecido obtenido por polimerización y endurecido de la composición endurecible dental de la presente invención también puede ser moldeado para ser utilizado como dientes artificiales, dentaduras postizas y bloques de resina para CAD/CAM. Entre ellos, la composición endurecible dental de la presente invención se puede utilizar ventajosamente como una resina compuesta dental. Esta exposiciones de resina compuesta tanto de alta difusión de la luz y de alta transparencia y coincide con los dientes naturales muy bien, y tiene una alta resistencia mecánica y alta lisura superficial y brillo después del pulido como un producto endurecido, así como excelentes propiedades de manejo como una pasta.

Ejemplos

La presente invención se describirá con detalle a continuación mediante los siguientes ejemplos y ejemplos comparativos, sin la intención de limitar el alcance de la presente invención a estos ejemplos. Los métodos de ensayo, materiales, etc., usados en los ejemplos se muestran colectivamente a continuación.

[Medición del tamaño de la partícula de polvo]

Un analizador de distribución del tamaño de difracción por láser (SALD-2100, fabricado por Shimadzu Corporation) se usó para medir el tamaño de partícula de cada uno de los polvos producidos. Como medio de dispersión, se usó una solución acuosa al 0,2 % de hexametáfosfato sódico. El tamaño de partículas de una sol. de sílice y la de las partículas ultrafinas inorgánicas se obtuvieron tomando micrografías electrónicas de estas partículas.

[Medición del volumen de poros y del área superficial específica]

El volumen de poros y el área superficial específica se midieron con BELSORP-mini II (BEL Japón, Inc.) mediante el método de adsorción de gas N₂. El área superficial específica se calculó mediante el método BET.

[Propiedades de manipulación]

La composición endurecible dental producida de esa manera, se llenó en una cavidad de 4 mm x 4 mm, y las propiedades de la pasta de los mismos se evaluaron, en términos de facilidad de llenado, de acuerdo con el siguiente criterio de evaluación.

5: Particularmente excelente en la formación de la propiedad. La pasta propaga muy bien. No es pegajosa y es muy fácil de llenar.

4: Excelente en la formación de la propiedad. La pasta propaga muy bien. No es pegajosa y es muy fácil de llenar.

3: Que tienen formación de la propiedad. La pasta propaga muy bien. No es pegajosa y es muy fácil de llenar.

2: De cualquier propiedad de formación o la propagación de la pasta es pobre, o la pasta es pegajosa y difícil de llenar.

1: La formación de la propiedad, la difusión, y la pegajosidad de la pasta son todos pobres e inadecuados para su uso práctico. Poco práctico para llenar.

La clasificación de pastas 3, 4 y 5 son adecuadas para su uso práctico.

[Propiedades de estabilida de la pasta]

La composición endurecible dental pastosa producida de esa manera se llenó en una jeringa para CLEARFIL MAJESTY (fabricado por Kuraray Medical Inc.), y se dejó reposar durante 1 hora en una cámara termostática a 25 °C (con una humedad del 40 %). Después del reposo, la pasta se colocó en un montículo en el centro de una placa de vidrio (5 cm x 5 cm), otra placa de vidrio (5 cm x 5 cm) que se colocaron en el montículo de pasta y se aplicó 1,0 kg de peso sobre el mismo. Después de 30 segundos, los diámetros más largos y más cortos de la pasta se midieron a través de la placa de vidrio, y la media aritmética de estos diámetros se calculó para obtener la consistencia. La composición endurecible dental pastosa producida de esa manera se llenó en una jeringuilla de CLEARFIL MAJESTY (fabricado por Kuraray Medical Inc.), se colocó en una cámara termostática a 50 °C (con una humedad del 40 %) durante una semana, y luego se dejó reposar durante 1 hora en una cámara termostática a 25 °C (con una humedad del 40 %). Después, la consistencia se midió de la misma manera como se ha descrito anteriormente. Se calculó la diferencia (cantidad de cambio) entre la consistencia después de 1 hora de pie a 25 °C y la consistencia después de 1 semana de reposo a 50 °C. La pasta que mostró la cantidad de cambio dentro de $\pm 1,5$ mm, se consideró como uno aceptable.

[Resistencia a la flexión del producto endurecido]

Se preparó una muestra de ensayo (2 mm x 2 mm x 30 mm) del producto endurecido de la composición endurecible dental producida. La muestra de prueba se sumergió en agua a 37 °C durante 24 horas. Después, la resistencia a la flexión de la muestra de prueba se midió usando una máquina de ensayo universal (fabricado por Instron) con una luz que se fijó en 20 mm y una velocidad de crucero fijada en 1 mm/min de acuerdo con un método de prueba de flexión de tres puntos.

[Capacidad para ser pulido]

La composición endurecible dental producida se llenó en un molde de acero inoxidable (con un espesor de 1 mm y un diámetro de 15 mm). El molde se sujetó entre los portaobjetos de vidrio superior e inferior y las superficies superior e inferior del molde se expusieron a cada irradiación de luz durante 2 minutos con un irradiador de luz visible para el uso dental (α -Light II, fabricado por Morita Corporation). Por lo tanto, la composición endurecible dental se endureció. El producto endurecido se cogió del molde y, después una superficie del producto endurecido se pulió con un papel de lija

resistente al agua n.º 800. Después, esta superficie pulida se pulió con un kit dental de pulido (LEM 80, fabricado por KAVO) a 3000 rpm durante 20 segundos. Como material de pulido, se usó Porceny Hydon (fabricado por Tokyo Shizaisha). El brillo de la superficie pulida se midió con un medidor de Glos (VG-2000, fabricado por Nippon Denshoku Industries Co., Ltd.) y se indicó como una razón para el brillo especular de 100 %. La medición se realizó a cabo a un ángulo de 60 grados. El grado adecuado de brillo es del 75 % o más.

[Índice de refracción]

El índice de refracción de cada uno de los polvos producidos se midió con un refractómetro Abbe por el método de inmersión, en el que una línea D de sodio se usó como fuente de luz, y el diiodometano en el que el azufre se disolvió, 1-bromonaftaleno, salicilato de metilo, dimetilformamida, 1-pentanol, o similar, se usó como un líquido. Para medir el índice de refracción de cada uno de los polímeros de los monómeros polimerizables (A) usados en los Ejemplos y en los Ejemplos Comparativos, se usó una muestra de prueba preparada de la siguiente manera. Se disolvieron 0,5 partes en peso de α -alcanforquinona como un iniciador de polimerización y 1,0 partes en peso de acetato de N, N-dimetilaminobenzoato de etilo como un acelerador de polimerización en 100 partes en peso del monómero polimerizable (A), y la mezcla resultante se desgasificó y, después se fotopolimerizaron para obtener un producto endurecido. Después, el producto endurecido se formó en un paralelepípedo rectangular de 5 mm x 10 mm x 20 mm como una muestra de prueba.

[Transparencia del producto endurecido]

Se preparó una muestra de prueba en forma de disco (20 mm \square x 1,0 mm) del producto endurecido de la composición endurecible dental. La ligereza (Lw) de la muestra de prueba en una placa blanca estándar coloca detrás de la muestra y la ligereza (Lb) de la misma muestra de prueba en un plato negro estándar colocado detrás de la muestra se midió usando un espectrofotómetro (CM-3610d, fabricado por Minolta Co., Ltd.) equipada con una fuente de luz iluminante C con un observador 2°, y la diferencia entre la ligereza (Lw) y la ligereza (Lb) ($\Delta L = Lw - Lb$) se calculó para usarse como una medida del grado de transparencia. Un valor más alto de ΔL se refiere a una mayor nivel de la transparencia del producto endurecido. El alto grado de transparencia es 25 o más.

[Medición de la transmitancia de luz total y Turbidez]

La composición endurecible dental producida se llenó en un molde de Teflon (marca registrada) (con un diámetro de 30 mm x un grosor de 0,25 mm). El molde se sujetó entre los portaobjetos de vidrio superior e inferior, y las superficies superior e inferior del molde se expusieron cada uno a irradiación de luz durante 1 minuto. Por lo tanto, la composición endurecible dental se endureció. El producto endurecido se cogió del molde, y después, la transmitancia total de la luz y la turbidez se midieron con un medidor de turbidez (NDH-5000, fabricado por Nippon Denshoku Industries Co., Ltd.). La turbidez se calculó mediante la siguiente fórmula (2). Los valores más altos de la transmitancia de luz total y la turbidez significan un mayor nivel de difusión de la luz de un producto endurecido. La transmitancia total de luz apropiada es del 80% o superior, y la turbidez apropiada es 70% o superior.

40

$$\text{Turbidez} = \text{Transmitancia difusa} / \text{Transmitancia de luz total} \times 100 (\%) \dots (2)$$

[Preparación Ejemplo 1] Preparación del monómero polimerizable A-1

Se disolvieron 0,5 partes en peso de α -alcanforquinona como un iniciador de la polimerización y 1,0 parte en peso de N,N-dimetilaminobenzoato de etilo como un acelerador de la polimerización en 65 partes en peso de bisfenol A metacrilato de diglicilo (Bis-GMA) y 35 partes en peso de dimetacrilato de trietilenglicol para preparar un monómero polimerizable A-1. El índice de refracción del monómero polimerizable A-1 después de la polimerización fue 1,55.

[Preparación Ejemplo 2] Preparación de Monómero polimerizable A-2

Un polímero polimerizable A-2 se preparó de la misma manera como en el Ejemplo de Preparación 1 excepto que se usaron 75 partes en peso de Bis-GMA y 25 partes en peso de trietilenglicol dimetacrilato. El índice de refracción del monómero polimerizable A-2 después de la polimerización fue 1,56.

55

[Preparación Ejemplo 3] Preparación del monómero polimerizable A-3

Un polímero polimerizable A-3 se preparó de la misma manera como en el Ejemplo de Preparación 1 excepto que se usaron 25 partes en peso de Bis-GMA, 40 partes en peso de dimetilacrilato de [2,2,4-trimetilhexametileno bis(2-carbamoiloxietilo)] (UDMA) y 35 partes en peso de dimetacrilato de trietilenglicol. El índice de refracción del monómero polimerizable A-3 después de la polimerización fue 1,52.

60

[Preparación Ejemplo 4] Preparación del monómero polimerizable A-4

Un polímero polimerizable A-4 se preparó de la misma manera como en el Ejemplo de Preparación 1 excepto que se usaron 30 partes en peso de Bis-GMA, 40 partes en peso de UDMA y 30 partes en peso de dimetacrilato de

65

trietilenglicol. El índice de refracción del monómero polimerizable A-4 después de la polimerización fue 1,53.

[Preparación Ejemplo 5] Preparación del monómero polimerizable A-5

- 5 Un polímero polimerizable A-5 se preparó de la misma manera como en el Ejemplo de Preparación 1 excepto que se usaron 80 partes en peso de glicol dimetacrilato de neopentilo y 20 partes en peso de UDMA. El índice de refracción del monómero polimerizable A-5 después de la polimerización fue 1,50.

[Preparación Ejemplo 6] Preparación de partículas inorgánicas B-1

- 10 1000 g de sol. de sílice con un tamaño de partícula medio de 10 a 20 nm (SNOWTEX ST-20, fabricado por Nissan Chemical Industries, Ltd.) se puso en una bandeja de esmalte, y después se secó en un secador de aire caliente a 90 ° C hasta que se obtuvo un peso constante. La sustancia obtenida de esa manera se calcinó en un horno eléctrico a 400 °C durante 1 hora para obtener 200 g de material sólido calcinado. El material sólido calcinado obtenido se esa
15 manera se molió en un molino de bolas vibratorio durante 90 minutos para obtener un polvo. 100 partes en peso del polvo obtenido de esa manera, se sometieron a tratamiento con 20 partes de la superficie por peso de γ -metacriloxipropiltrimetoxisilano (KBM 503, fabricado por Shin-Etsu Chemical Co., Ltd.). Como resultado, se obtuvieron partículas inorgánicas B-1, que tienen un tamaño de partícula promedio de 5,6 nm, un índice de refracción de 1,45, una superficie específica de 154 m²/g y un volumen de poros de 0,27 ml/g.

[Preparación Ejemplo 7] Preparación de partículas inorgánicas B-2

- 25 Se obtuvieron las partículas inorgánicas B-2 que tienen un tamaño de partícula promedio de 3,1 μ m, un índice de refracción de 1,45, un área superficial específica de 98 m²/g y un volumen de poros de 0,13 ml/g de la misma manera como en el Ejemplo de Preparación 6, excepto que se usó un sol de sílice con un tamaño de partícula promedio de 40 a 50 nm (SNOWTEX ST-OL, fabricado por Nissan Chemical Industries, Ltd.) y un material sólido calcinado se molió en un molino de bolas vibratorio durante 180 minutos.

[Preparación Ejemplo 8] Preparación de partículas inorgánicas B-3

- 30 Se obtuvieron partículas inorgánicas B-3 que tienen un tamaño de partícula promedio de 14,8 μ m, un índice de refracción de 1,45, un área superficial específica de 290 m²/g y un volumen de poros de 0,9 ml/g de la misma manera como en el Ejemplo de Preparación 6, excepto que se usó una sol. de sílice con un tamaño de partícula promedio de 4 a 6 nm (SNOWTEX ST-XS, fabricado por Nissan Chemical Industries, Ltd.) y un material sólido calcinado se molió en
35 un molino de bolas vibratorio durante 60 minutos.

[Preparación Ejemplo 9] Preparación de partículas inorgánicas B-4

- 40 Se añadió una sol. de sílice con pH ajustado (con un pH de 2,5) preparado mediante la adición de ácido nítrico diluido a 225 g de un sol. de sílice (SNOWTEX ST-20, fabricado por Nissan Chemical Industries, Ltd.) lentamente gota a gota a 30 g de acetato de circonio (acetato de circonio que contiene del 15 al 16 % de Zr, fabricado por Sigma-Aldrich Corporation) para obtener una sol. mixto. La sol. obtenida de esa manera se puso en una bandeja de esmalte, y después se secó en un secador de aire caliente a 90 °C. Un material sólido obtenido por la retirada de la sol. se sometió a un tratamiento térmico en un horno eléctrico a 550 ° C durante 1 hora, y después el material sólido resultante
45 se molió en un molino de bolas vibratorio durante 90 minutos. Por lo tanto, se obtuvo un polvo que tenía un índice de refracción de 1,48, un tamaño de partícula promedio de 6,4 nm, una superficie específica de 175 m²/g, y un volumen de poros de 0,2 ml/g. 100 partes en peso del polvo obtenido de esa manera se sometieron a tratamiento de superficie con 20 partes en peso de γ -metacriloxipropiltrimetoxisilano. Como resultado, se obtuvieron unas partículas inorgánicas B-4.

[Preparación Ejemplo 10] Preparación de partículas inorgánicas B-5

- 50 100 partes en peso de cuarzo condensado que tenía un tamaño de partícula promedio de 1,7 μ m se sometieron a tratamiento superficial con 2 partes en peso de γ -metacriloxipropiltrimetoxisilano. Como resultado, se obtuvieron
55 partículas inorgánicas B-5 que tenían un índice de refracción de 1,46.

[Preparación Ejemplo 11] Preparación de partículas inorgánicas B-6

- 60 Una sol. de sílice que tenía un tamaño de partícula promedio de 10 a 20 nm (SNOWTEX ST-20, fabricado por Nissan Chemical Industries, Ltd.) se presecó mediante secado por pulverización con un secador micromist "MDL-050" (fabricado por Fujisaki Electric Co., Ltd.) en las condiciones de una temperatura de entrada de 200 °C, una temperatura interna de 80 °C, un caudal de aire de 30 ml/min y un caudal líquido de 15 ml/min. El polvo esférico obtenido se esa manera se calcinó en un horno eléctrico a 400 °C durante 1 hora para obtener un polvo calcinado. 100 partes en peso del polvo obtenido de esa manera se sometieron a tratamiento de superficie con 20 partes en peso de γ -metacriloxipropiltrimetoxisilano (KBM 503, fabricados por Shin-Etsu Chemical Co., Ltd.). Como resultado, se
65 obtuvieron partículas inorgánicas B-6 que tienen un tamaño de partícula promedio de 4,9 nm, un índice de refracción

de 1,45, una superficie específica de 110 m²/g, y un volumen de poros de 0,17 ml/g.

[Preparación Ejemplo 12] Preparación de partículas inorgánicas B-7

- 5 Se obtuvieron partículas inorgánicas B-7 que tienen un tamaño de partícula promedio de 1,5 μm, un índice de refracción de 1,45, una superficie específica de 106 m²/g y un volumen de poros de 0,16 ml/g de la misma manera que en el Ejemplo de Preparación 11, excepto que una sol. de sílice que tiene un tamaño de partícula promedio de 10 a 20 nm (SNOWTEX ST-20, fabricado por Nissan Chemical Industries, Ltd.) se diluyó con agua destilada hasta el 5 % en peso, y después se pre-secó a las condiciones de una temperatura de entrada de 200 °C, una temperatura interna de 80 °C, un caudal de aire de 55 ml/min, y un caudal líquido de 15 ml/min.

[Preparación Ejemplo 13] Partículas inorgánicas C-1

- 15 100 partes en peso de vidrio de bario (8235UF 0,4, que tenían un tamaño de partícula promedio de 0,4 μm, fabricado por Schott) se sometieron a tratamiento superficial con 8 partes en peso de γ-metacriloxipropiltrimetoxisilano. Como resultado, se obtuvieron partículas inorgánicas C-1. El índice de refracción de las partículas inorgánicas C-1 fue 1,55.

[Preparación Ejemplo 14] Partículas inorgánicas C-2

- 20 100 partes en peso de vidrio de bario (8235UF 0,7, que tenían un tamaño de partícula promedio de 0,7 μm, fabricado por Schott) se sometieron a tratamiento superficial con 4 partes en peso de γ-metacriloxipropiltrimetoxisilano. Como resultado, se obtuvieron partículas inorgánicas C-2. El índice de refracción de las partículas inorgánicas C-2 fue 1,55.

[Preparación Ejemplo 15] Partículas inorgánicas C-3

- 25 100 partes en peso de vidrio de bario (GM27884 NanoFine 180, que tenían un tamaño de partícula promedio de 0,2 μm, fabricado por Schott) se sometieron a tratamiento superficial con 13 partes en peso de γ-metacriloxipropiltrimetoxisilano. Como resultado, se obtuvieron partículas inorgánicas C-3. El índice de refracción de las partículas inorgánicas C-3 fue 1,53.

[Preparación Ejemplo 16] Partículas inorgánicas C-4

- 35 Se molieron cerámicas de cristal de lantano (GM31684, fabricados por Shott) en un molino de bolas vibratorio durante 12 horas para obtener un polvo. 100 partes en peso del polvo obtenido de esa manera, se sometieron a tratamiento superficial con 4 partes en peso de γ-metacriloxipropiltrimetoxisilano. Como resultado, se obtuvieron partículas inorgánicas C-4 que tenían un tamaño de partícula promedio de 0,8 μm. El índice de refracción de las partículas inorgánicas C-4 fue de 1,58.

[Preparación Ejemplo 17] Partículas inorgánicas C-5

- 40 Se obtuvieron partículas inorgánicas C-5 que tenían un índice de refracción de 1,53, un tamaño de partícula promedio de 6,2 μm, un área superficial específica de 165 m²/g y un volumen de poros de 0,22 ml/g de la misma manera que en el Ejemplo de Preparación 9, excepto que se usaron 55 g de acetato de circonio (acetato de circonio que contenía del 15 al 16 % de Zr, fabricado por Sigma-Aldrich Corporation) y 225 g de sol. de sílice (SNOWTEX ST-20, fabricado por Nissan Chemical Industries, Ltd.).

[Preparación Ejemplo 18] Partículas inorgánicas C-6

- 50 Se obtuvieron partículas inorgánicas C-6 que tenían un índice de refracción de 1,55, un tamaño de partícula promedio de 6,3 μm, un área superficial específica de 160 m²/g y un volumen de poros de 0,21 ml/g de la misma manera que en el Ejemplo de Preparación 9, excepto que se usaron 85 g de acetato de circonio (acetato de circonio que contenía del 15 al 16 % de Zr, fabricado por Sigma-Aldrich Corporation) y 225 g de sol. de sílice (SNOWTEX ST-20, fabricado por Nissan Chemical Industries, Ltd.).

- 55 [Preparación Ejemplo 19] Preparación de partículas ultrafinas inorgánicas D-1

100 partes en peso de partículas ultrafinas casi esféricas que tenían un tamaño de partícula promedio de 20 nm (Aerosil 130, fabricado por Nippon Aerosil Corporation) se sometieron a tratamiento superficial con 40 partes en peso de γ-metacriloxipropiltrimetoxisilano. Como resultado, se obtuvieron partículas ultrafinas inorgánicas D-1.

[Preparación Ejemplo 20] Preparación de partículas ultrafinas inorgánicas D-2

- 65 100 partes en peso de partículas ultrafinas casi esféricas que tenían un tamaño de partícula promedio de 40 nm (Aerosil OX 50, fabricado por Nippon Aerosil Corporation) se sometieron a tratamiento superficial con 7 partes en peso de γ-metacriloxipropiltrimetoxisilano. Como resultado, se obtuvieron partículas ultrafinas inorgánicas D-2.

[Preparación Ejemplo 21] Preparación de partículas ultrafinas inorgánicas D-3

100 partes en peso de partículas ultrafinas casi esféricas que tenían un tamaño de partícula promedio de 20 nm (Aeroxide AluC, fabricado por Nippon Aerosil Corporation) se sometieron a tratamiento superficial con 20 partes en peso de γ -metacriloloxipropiltrimetoxisilano. Como resultado, se obtuvieron partículas ultrafinas inorgánicas D-3.

[Preparación Ejemplo 22] Preparación de partículas agregadas I descritas en el documento JP 09(1997)-255516 A

5 partes en peso de vidrio de bario (8235 que tenía un tamaño de partícula promedio de 0,7 μm y un índice de refracción de 1,55, fabricado por Schott) se dispersaron en 95 partes en peso de agua destilada, y la dispersión resultante se secó por pulverización con secadora por pulverización (tipo L8, fabricado por Ohkawara Kakohki Co., Ltd.) para obtener un polvo agregado de vidrio de bario. Este polvo agregado seco se colocó en un horno eléctrico y se calcinó a 700 $^{\circ}\text{C}$ durante 3 horas para obtener partículas agregadas calcinadas que tenían un tamaño de partícula promedio de 10 μm . El polvo calcinado se enfrió a temperatura ambiente en el horno eléctrico, y después, 100 partes en peso del polvo se sometieron a un tratamiento superficial con 5 partes en peso de γ -metacriloloxipropiltrimetoxisilano. Como resultado, se obtuvieron partículas agregadas I en forma de partículas para la comparación con las partículas inorgánicas (C).

[Preparación Ejemplo 23] Preparación de partículas agregadas II descritas en el documento JP 09(1997)-255516 A

100 partes en peso de polvo de sílice esférica que tenían un tamaño de partícula promedio de 0,2 μm (SEAHOSTAR que tenía un índice de refracción de 1,46, fabricado por Nippon Shokubai Co., Ltd.) se agregaron en presencia de 2 partes en peso de alcohol polivinílico (PVA -117, fabricado por Kuraray Co., Ltd.) mediante secado por pulverización con un secador por pulverización (tipo L8, fabricado por Ohkawara Kakohki Co., Ltd.). Como resultado, se obtuvo un compuesto de polvo agregado de partículas casi esféricas con un tamaño de partícula promedio de aproximadamente 19 μm . Este polvo agregado se calcinó a 950 $^{\circ}\text{C}$ durante 1 hora, y después 100 partes en peso del polvo se sometieron a un tratamiento superficial con 2 partes en peso de γ -metacriloloxipropiltrimetoxisilano. Como resultado, se obtuvieron partículas agregadas II como partículas para la comparación con las partículas inorgánicas (B).

[Ejemplos de referencia 1 - 13, Ejemplos 14 - 32 y Ejemplos Comparativos 1 a 7]

El monómero polimerizable, las partículas inorgánicas y las partículas ultrafinas inorgánicas, si fuesen necesarias, preparados de las maneras descritas anteriormente se mezclaron y se amasaron homogéneamente en las cantidades indicadas en las Tablas 1 a 4 y se desgasificaron al vacío. Como resultado, se obtuvieron las composiciones endurecibles dentales de los Ejemplos de Referencia 1 - 13, Ejemplos 14 -32 y de los Ejemplos Comparativos 1 a 7. Las propiedades de estas composiciones endurecibles dentales se evaluaron de las maneras descritas anteriormente. Las Tablas 1 a 6 muestran los resultados.

Tabla 1

			Ejemplos de Referencia							
			1	2	3	4	5	6	7	
Componentes de la composición endurecible dental	Monómero polimerizable (A) (% en peso)	A-1	30	30	30	30	35	35		
		A-2							35	
		A-3								
		A-4								
	Partículas inorgánicas (B) (% en peso)	B-1	5	0,5	2	7	5	5	5	
		B-2								
		B-3								
		B-4								
	Partículas inorgánicas (C) (% en peso)	(C-I)	C-1	65	69,5	68	63			
			C-2					60		
			C-3						60	
		(C-II)	C-4							60
			C-5							
			C-6							
	Partículas ultrafinas inorgánicas (D) (% en peso)	D-1								
D-2										
D-3										
Transparencia (ΔL)			32	35	33	30	32	28	27	
Turbidez (%)			96	70	85	96	96	97	96	
Transmitancia de luz total (%)			86	87	87	84	87	84	84	
Propiedades de manipulación			3	3	3	3	3	3	3	
Cantidad de cambio de la consistencia (mm)			+0,8	+0,7	+0,7	+0,4	+0,2	+0,9	+0,3	

	Ejemplos de Referencia						
	1	2	3	4	5	6	7
Resistencia flexible (MPa)	131	133	133	132	136	127	132
Capacidad para ser pulido (%)	80	82	82	80	77	84	78

Tabla 2

			Ejemplos de referencia 8-13							Ej. 14
			8	9	10	11	12	13		
Componentes de la composición endurecible dental	Monómero polimerizable (A) (% en peso)	A-1				20	20	20		
		A-2	30							
		A-3		30						
		A-4			30				20	
	Partículas inorgánicas (B) (% en peso)	B-1	5	5	5				5	
		B-2				5				
		B-3					5			
		B-4						5		
	Partículas inorgánicas (C) (% en peso)	(C-I)	C-1	65	65	65	75	75	75	
			C-2							15
			C-3							
		(C-II)	C-4							
			C-5							60
			C-6							
	Partículas ultrafinas inorgánicas (D) (% en peso)	D-1								
		D-2								
D-3										
Transparencia (AL)			30	27	28	32	31	34	30	
Turbidez (%)			96	96	96	95	96	90	95	
Transmitancia de luz total (%)			84	87	87	87	86	88	85	
Propiedades de manipulación			3	3	3	3	3	3	4	
Cantidad de cambio de la consistencia			+0,5	+0,6	+0,7	+0,4	+0,5	+0,5	+0,2	
Resistencia flexible(MPa)			132	134	132	134	132	129	143	
Capacidad para ser pulido (%)			81	81	82	79	80	83	86	

Tabla 3

			Ejemplos						
			15	16	17	18	19	20	
Componentes de la composición endurecible dental	Monómero polimerizable (A) (% en peso)	A-1							
		A-2							
		A-3							
		A-4	20	15	15	15	15	15	
	Partículas inorgánicas (B) (% en peso)	B-1	5	5	5	5	5	5	
		B-2							
		B-3							
		B-4							
	Partículas inorgánicas (C) (% en peso)	(C-I)	C-1						
			C-2						
			C-3	60	50	30	25	25	25
		(C-II)	C-4						
			C-5		30	50	50	50	50
			C-6	15					
	Partículas ultrafinas inorgánicas (D) (% en peso)	D-1				5			
		D-2					5		
D-3							5		
Transparencia (AL)			27	31	32	30	31	29	
Turbidez (%)			96	96	96	96	96	96	
Transmitancia de luz total			86	85	84	84	84	84	
Propiedades de manipulación			4	4	4	5	5	5	
Cantidad de cambio de la consistencia			-0,1	+0,3	+0,2	-0,2	-0,1	+0,1	
Resistencia flexible(MPa)			147	146	147	145	142	147	
Capacidad para ser pulido (%)			84	86	83	84	85	83	

Tabla 4

			Ejemplos						
			21	22	23	24	25	26	
Componentes de la composición endurecible dental	Monómero polimerizable (A) (% en peso)	A-1							
		A-2							
		A-3							
		A-4	20	20	20	20	20	20'	
	Partículas inorgánicas (B) (% en peso)	B-1	0,5	10					
		B-2							
		B-3							
		B-4							
		B-6			1	5	8		
	Partículas inorgánicas (C) (% en peso)	(C-I)	C-1						
			C-2						
			C-3	60	50	50	50	50	50
		(C-II)	C-4						
			C-5		20				
			C-6	19,5		29	25	22	29
	Partículas ultrafinas inorgánicas (D) (% en peso)	D-1							
		D-2							
		D-3							
	Transparencia (AL)			34	27	33	31	29	32
	Turbidez (%)			74	97	75	90	95	71
Transmitancia de luz total (%)			87	82	88	86	82	89	
Propiedades de manipulación			4	4	4	4	4	4	
Cantidad de cambio de la consistencia			+0,2	+0,3	+0,2	+0,3	+0,3	+0,4	
Resistencia flexible(MPa)			143	146	141	142	138	139	
Capacidad para ser pulido (%)			84	83	82	81	82	84	

Tabla 5

			Ejemplos						
			27	28	29	30	31	32	
Componentes de la composición endurecible dental	Monómero polimerizable (A) (% en peso)	A-1							
		A-2							
		A-3							
		A-4	20	20	20	20	30	25	
	Partículas inorgánicas (B) (% en peso)	B-1							
		B-2							
		B-3							
		B-4							
		B-6			5	5	5	5	
	Partículas inorgánicas (C) (% en peso)	(C-I)	C-1						
			C-2						
			C-3	50	50	60	15	25	25
		(C-II)	C-4						
			C-5						
			C-6	25	23	15	60	40	40
	Partículas ultrafinas inorgánicas (D) (% en peso)	D-1						5	
		D-2							
		D-3							
	Transparencia (AL)			29	26	30	28	28	30
	Turbidez (%)			89	94	87	92	89	91
Transmitancia de luz total (%)			84	81	82	80	83	82	
Propiedades de manipulación			4	4	4	4	4	5	
Cantidad de cambio de la consistencia			+0,5	+0,5	+0,4	+0,3	+0,4	+0,2	
Resistencia flexible (MPa)			141	142	138	135	133	139	
Capacidad para ser pulido (%)			85	85	82	83	82	82	

Tabla 6

			Ejemplos Comparativos							
			1	2	3	4	5	6	7	
Componentes de la composición endurecible dental	Monómero polimerizable (A) (% en peso)	A-1	30	30	30	30	30	30		
		A-2								
		A-3								
		A-4								
	(Monómero para la comparación)	A-5							30	
	Partículas inorgánicas (B) (% en peso),	(Partículas para la comparación)	B-1				15		5	5
			B-2							
			B-3							
			B-4							
	(Partículas para la comparación)	B-5		5						
		C-5*	5							
	Partículas agregadas II (Partículas para la comparación)						5			
	Partículas inorgánicas (C) (% en peso)	(C-I)	C-1	65	65	70	55	65		65
			C-2							
			C-3							
		(C-II)	C-4							
			C-5							
C-6										
Partículas agregadas I (Partículas para la comparación)							65			
Partículas ultrafinas inorgánicas (D) (% en peso)	(D)	D-1								
		D-2								
		D-3								
Transparencia (AL)			37	21	36	22	26	30	20	
Turbidez (%)			32	89	31	96	57	92	88	
Transmitancia de luz total (%)			87	77	86	78	82	80	79	
Propiedades de manipulación			3	3	3	3	3	3	3	
Cantidad de cambio de la consistencia			+0,7	+0,6	+0,7	+0,4	+1,6	+1,8	+0,9	
Resistencia flexible (MPa)			134	135	132	131	128	130	121	
Capacidad para ser pulido (%)			82	61	83	82	80	78	82	

* Las partículas inorgánicas C-5 se usaron en lugar de las partículas inorgánicas (B).

5 En todas las composiciones de los Ejemplos 1 a 32, se obtuvo alta transparencia y difusión de la luz. Además, también se obtuvieron propiedades de manipulación de buena pasta. En cuanto a la resistencia mecánica, capacidad de pulido y la cantidad de cambio de la consistencia, es decir, la estabilidad de propiedades de la pasta, se obtuvieron resultados favorables.

10 En el Ejemplo Comparativo 1, se usaron las partículas inorgánicas C-5 en lugar de las partículas inorgánicas (B). Ya que el índice de refracción de las partículas inorgánicas C-5 era mayor que el intervalo de índices de refracción de las partículas inorgánicas (B) de la presente invención, el índice de refracción del monómero polimerizable (A) y el de las partículas inorgánicas (C) estaban más cerca el uno al otro. Como resultado, el Ejemplo Comparativo 1 fue significativamente inferior en difusión de la luz a los Ejemplos. Las partículas inorgánicas B-5 que se usaron en el Ejemplo Comparativo 2 fueron partículas no agregadas grandes que tenían un tamaño de partícula promedio de 1,7 μ . Como resultado, el Ejemplo Comparativo 2 fue significativamente inferior en capacidad para ser pulido a los Ejemplos. En el Ejemplo Comparativo 3, no se usaron las partículas inorgánicas (B). Como resultado, el Ejemplo Comparativo 3 fue significativamente inferior en difusión de la luz a los Ejemplos. En el Ejemplo Comparativo 4, el contenido de las partículas inorgánicas B-1 usado en el mismo era más alta que el intervalo de contenidos de la presente invención. Como resultado, el ejemplo comparativo 4 fue significativamente inferior de la transparencia a los Ejemplos. Las partículas agregadas II que se usaron en el Ejemplo Comparativo 5 fueron compuestas de partículas de sílice de 0,2 μ m como partículas primarias. Como resultado, el Ejemplo comparativo 5 fue inferior en difusión de la luz a los Ejemplos y tenía una mayor cantidad de cambio de la consistencia que los Ejemplos. En las partículas agregadas I que se usaron en el Ejemplo Comparativo 6, las partículas primarias se unieron libremente uno con otro. Como resultado, el Ejemplo Comparativo 6 tenía una mayor cantidad de cambio de la consistencia. El monómero polimerizable (A) que se usó en la Comparativa Ejemplo 7 tenía un índice de refracción más bajo después de la polimerización de la gama de índices de refracción de la presente invención, con una mayor diferencia del índice de refracción de las partículas inorgánicas (C). Como resultado, el ejemplo comparativo 7 era inferior en transparencia.

15

20

25

Aplicabilidad industrial

La composición endurecible dental de la presente invención puede usarse adecuadamente como un sustituto para una parte de un diente natural o todo un diente natural en el tratamiento del campo dental.

5

REIVINDICACIONES

1. Una composición endurecible dental que comprende:
 - 5 un monómero polimerizable (A) que tiene un índice de refracción de 1,52 a 1,58 después de la polimerización; partículas inorgánicas (B) que tienen un índice de refracción de 1,43 a 1,50; y partículas inorgánicas (C) que tienen un índice de refracción de 1,52 a 1,58, donde las partículas inorgánicas (B) son agregados de las partículas finas inorgánicas que tienen un tamaño de partícula primaria promedio de 2 a 50 nm, y el contenido de partículas inorgánicas (B) es del 0,1 al 10 % en peso, donde las partículas inorgánicas (C) incluyen: partículas inorgánicas no agregadas (C-I) que tienen un tamaño de partícula promedio de 0,1 a 1,0 μm ; y partículas inorgánicas agregadas (C-II) que tienen un tamaño de partícula promedio de 1 a 20 μm y que incluyen partículas finas basadas en sílice que tienen un tamaño de partícula promedio de 2 a 50 nm y un óxido que contenía al menos un metal pesado, y una proporción de peso entre las partículas inorgánicas (C-I) y las partículas inorgánicas (C-II) es de 1:4 a 4:1.
 - 15 2. La composición endurecible dental de acuerdo con la reivindicación 1, donde las partículas inorgánicas (B) tienen un tamaño de partícula promedio de 1,0 a 20 μm .
 3. La composición endurecible dental de acuerdo con la reivindicación 1, donde las partículas inorgánicas (B) tienen un área superficial específica de 50 a 400 m^2/g y un volumen de poros de 0,05 a 1,5 ml/g.
 - 20 4. La composición endurecible dental de acuerdo con la reivindicación 1, donde una diferencia entre el índice de refracción del monómero polimerizable (A) después de la polimerización y el índice de refracción de las partículas inorgánicas (C) es 0,03 o menos.
 - 25 5. La composición endurecible dental de acuerdo con la reivindicación 1, donde una diferencia entre el índice de refracción del monómero polimerizable (A) después de la polimerización y el índice de refracción de las partículas inorgánicas (B) es 0,05 o menos.
 - 30 6. La composición endurecible dental de acuerdo con la reivindicación 1, donde la composición endurecible dental contiene del 8 al 40 % en peso del monómero polimerizable (A), del 0,1 al 10 % en peso de las partículas inorgánicas (B) y del 59,9 al 91,9 % en peso de las partículas inorgánicas (C).
 - 35 7. La composición endurecible dental de acuerdo con la reivindicación 1, que comprende además del 1 al 10 % en peso de las partículas ultrafinas inorgánicas (D) que tienen un tamaño de partícula promedio de 5 a 50 nm.
 8. Una resina compuesta que comprende la composición endurecible dental de acuerdo con la reivindicación 1.