

19



OFICINA ESPAÑOLA DE  
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 734 435**

51 Int. Cl.:

**A61K 6/02** (2006.01)

**A61K 6/027** (2006.01)

**A61K 6/083** (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

86 Fecha de presentación y número de la solicitud internacional: **05.02.2008 PCT/JP2008/051863**

87 Fecha y número de publicación internacional: **14.08.2008 WO08096753**

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **05.02.2008 E 08710795 (9)**

97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **12.06.2019 EP 2119425**

54 Título: **Composición dental**

30 Prioridad:

**08.02.2007 JP 2007029307**

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

**05.12.2019**

73 Titular/es:

**KURARAY NORITAKE DENTAL INC. (100.0%)  
1621, Sakazu, Kurashiki-shi  
Okayama 710-8622, JP**

72 Inventor/es:

**TERAKAWA, EIICHI;  
OTA, AKIKO y  
SEKIGUCHI, TAKAHIRO**

74 Agente/Representante:

**MARTÍN BADAJOZ, Irene**

ES 2 734 435 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 dental

### 5 **Campo técnico**

La presente invención se refiere a una composición para uso dental que es capaz de sustituir una parte o la totalidad de un diente natural en el campo de la terapia dental.

### 10 **Técnica anterior**

Una resina de material compuesto constituida por un monómero polimerizable, una carga inorgánica y un iniciador de polimerización es el material usado más conocido hoy en día como material para rellenar y reparar fracturas de dientes y caries dentales.

15 La publicación de patente 1 divulga una técnica para obtener un material dental artificial que tiene alta transparencia, y resistencia mecánica y propiedad de pulido excelentes polimerizando y curando una composición preparada mezclando, en una razón de combinación especificada, un polvo de alúmina fino que tiene un índice de refracción y un tamaño de partícula especificados, una carga inorgánica que tiene un índice de refracción y un tamaño de partícula especificados y que tiene radiopacidad, y un monómero polimerizable que tiene un índice de refracción especificado.

20 La publicación de patente 2 describe una composición reparadora dental que comprende el 25-35% en peso de policarbonato-dimetacrilato (PCDMA), el 40-50% en peso de bisfenol A etoxilado-dimetacrilato (EBP-DMA) y el 18-28% en peso de 2,2'-bis[4-(3-metacriloxi-2-hidroxilpropoxi)-fenil]propano (Bis-GMA).

25 La publicación de patente 3 describe un material dental que comprende una resina endurecible y partículas de sílice de tamaño nanométrico dispersadas dentro de la resina, en el que las partículas de sílice tienen un diámetro promedio de menos de 200 nm y están presentes en una cantidad de más del 40% en peso.

30 La publicación de patente 4 describe composiciones reparadoras dentales que comprenden una clase específica de ésteres de bisfenol A etoxilado-metacrilato, concretamente, el 15-45% de compuesto de bisfenol Bis-EMA6, el 10-40% de 2,2'-bis[4-(3-metacriloxi-2-hidroxilpropoxi)-fenil]-propano (Bis-GMA) y el 0-10% del dimetacrilato de trietilenglicol (TEGDMA).

35 Publicación de patente 1: patente japonesa abierta a consulta por el público n.º Sho 63-303906

Publicación de patente 2: solicitud de patente estadounidense 2003/0212194

40 Publicación de patente 3: solicitud de patente estadounidense US 2002/0156152

Publicación de patente 4: solicitud de patente internacional WO 99/66880

### 45 **Divulgación de la invención**

#### **Problemas que va a resolver la invención**

50 Los materiales convencionales experimentan cambios en la transparencia antes y después de la polimerización de las composiciones. Por ejemplo, en una reparación de relleno directo, se permite que una composición polimerice después de que un dentista iguale el color de los dientes de los pacientes y las cargas, de modo que cuando un cambio en la transparencia es grande, no se obtiene el color deseado, haciendo que sea fácil que su percepción estética resulte afectada. Además, una composición puede tener malas propiedades adhesivas para un adhesivo para uso dental, dependiendo de las clases de las cargas usadas. Por otro lado, cuando las partículas inorgánicas están contenidas en una gran cantidad para mantener la resistencia, existen algunas desventajas como que la composición se vuelve rígida o seca y suelta, afectando de esta manera a la operabilidad de la reparación de relleno directo, de modo que no puede obtenerse una forma deseada.

55 Un objeto de la presente invención es proporcionar una composición para uso dental que tiene resistencia mecánica y operabilidad excelentes, y que tiene además un cambio pequeño en la transparencia antes y después de la polimerización, y que tiene excelentes propiedades adhesivas.

#### **Medios para resolver los problemas**

60 Como resultado de estudios intensivos para resolver los problemas anteriores, los presentes inventores han encontrado que una composición para uso dental que tiene resistencia mecánica y operabilidad excelentes, y que tiene además un cambio pequeño en la transparencia antes y después de la polimerización, y que tiene excelentes

propiedades adhesivas se obtiene combinando monómeros polimerizables especificados con partículas de alúmina especificadas en una razón especificada. La presente invención se ha perfeccionado de este modo.

Específicamente, la presente invención se refiere a una composición para uso dental que contiene

un monómero polimerizable (a) que tiene un anillo aromático y un grupo hidroxilo, que es un compuesto que tiene una estructura principal de bisfenol A y un grupo hidroxilo,

un monómero polimerizable (b) que tiene un anillo aromático sin tener ningún grupo hidroxilo, que es un compuesto que tiene una estructura principal de bisfenol A sin tener ningún grupo hidroxilo, y

un monómero polimerizable (c) distinto de los monómeros polimerizables (a) y (b),

en la que la composición para uso dental contiene los monómeros polimerizables (a), (b) y (c) en una cantidad de desde el 10 hasta el 30% en peso, de desde el 50 hasta el 70% en peso, y de desde el 10 hasta el 30% en peso, respectivamente, de todos los monómeros polimerizables; y

la composición para uso dental comprende además partículas de alúmina (d) que satisfacen los siguientes requisitos (i) y (ii):

(i) el índice de refracción ( $n_A$ ) es de desde 1,60 hasta 1,70; y

(ii) la proporción de partículas que tienen tamaños de partícula de desde 0,005 hasta 0,1  $\mu\text{m}$  es del 95% en número o más.

#### Efectos de la invención

La composición para uso dental de la presente invención presenta excelentes efectos como que la composición tiene resistencia mecánica y operabilidad excelentes, y tiene además un cambio pequeño en la transparencia antes y después de la polimerización, y excelentes propiedades adhesivas.

#### Mejor modo de llevar a cabo la invención

Una de las características de la composición para uso dental de la presente invención está en que la composición contiene

un monómero polimerizable (a) que tiene un anillo aromático y un grupo hidroxilo, que es un compuesto que tiene una estructura principal de bisfenol A y un grupo hidroxilo,

un monómero polimerizable (b) que tiene un anillo aromático sin tener ningún grupo hidroxilo, que es un compuesto que tiene una estructura principal de bisfenol A sin tener ningún grupo hidroxilo, y

un monómero polimerizable (c) distinto de los monómeros polimerizables (a) y (b),

en la que la composición para uso dental contiene los monómeros polimerizables (a), (b) y (c) en cantidades de intervalos especificados de todos los monómeros polimerizables; y

la composición para uso dental comprende además partículas de alúmina (d) que satisfacen los siguientes requisitos (i) y (ii):

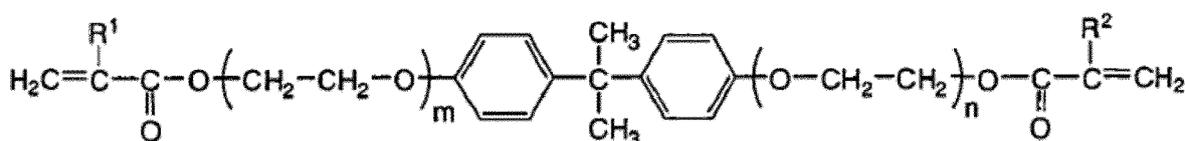
(i) el índice de refracción ( $n_A$ ) es de desde 1,60 hasta 1,70; y

(ii) la proporción de partículas que tienen tamaños de partícula de desde 0,005 hasta 0,1  $\mu\text{m}$  es del 95% en número o más.

El monómero polimerizable (a) que tiene un anillo aromático y un grupo hidroxilo es un compuesto que tiene una estructura principal de bisfenol A y un grupo hidroxilo. El número de los grupos polimerizables es preferiblemente de desde 1 hasta 6, y más preferiblemente de desde 2 hasta 4, desde el punto de vista de fácil disponibilidad y resistencia mecánica de un producto curado de la composición para uso dental. El número de los grupos hidroxilo es preferiblemente de desde 1 hasta 3, desde el punto de vista de fácil disponibilidad y hidrofiliidad de la composición para uso dental. El número de los anillos aromáticos es 2, desde el punto de vista de fácil disponibilidad y resistencia mecánica de un producto curado de la composición para uso dental. El monómero polimerizable (a) tiene una estructura principal de bisfenol A, es decir una estructura de bisfenol A sin átomos de hidrógeno en dos grupos hidroxilo. Los ejemplos del monómero polimerizable (a) tal como se mencionó anteriormente incluyen 2,2-bis[4-[3-(met)acrililoixi-2-hidroxipropoxi]fenil]propano (que puede denominarse a continuación en el presente documento Bis-GMA), 2-[4-[3-(met)acrililoixi-2-hidroxipropoxi]fenil]-2-[4-[2,3-di(met)acrililoixipropoxi]fenil]propano (que puede

denominarse a continuación en el presente documento Bis3), 2-[4-[3-(met)acrililoixi-2-hidroxiopoxi]fenil]-2-[4-(met)acrililoixidietoxifenil]propano, 2-[4-[3-(met)acrililoixi-2-hidroxiopoxi]fenil]-2-[4-(met)acrililoixitrietoxifenil]propano, 2-[4-[3-(met)acrililoixi-2-hidroxiopoxi]fenil]-2-[4-(met)acrililoixidipropoxifenil]propano, y similares. Estos monómeros polimerizables pueden usarse solos o en una combinación apropiada de dos o más clases. Entre estos monómeros polimerizables, se prefiere Bis-GMA, desde el punto de vista del aumento de la resistencia mecánica de un producto curado de la composición para uso dental y la resistencia de unión con los dientes.

El monómero polimerizable (b) que tiene un anillo aromático sin tener ningún grupo hidroxilo es un compuesto que tiene una estructura principal de bisfenol A sin tener ningún grupo hidroxilo. El número de los grupos polimerizables es preferiblemente de desde 1 hasta 6, y más preferiblemente de desde 2 hasta 4, desde el punto de vista de fácil disponibilidad y resistencia mecánica de un producto curado de la composición para uso dental. El número de los anillos aromáticos es 2, desde el punto de vista de fácil disponibilidad y resistencia mecánica de un producto curado de la composición para uso dental. El monómero polimerizable (b) tiene una estructura principal de bisfenol A. Los ejemplos del monómero polimerizable (b) tal como se mencionó anteriormente incluyen un compuesto representado por la fórmula (I):



(I)

en la que cada uno de R y R es un átomo de hidrógeno o un grupo metilo, y m y n son 0 o números positivos que muestran un número promedio de moles de un grupo etoxilo añadido, en la que la suma de m y n es preferiblemente de desde 1 hasta 6, y más preferiblemente de desde 2 hasta 4, incluyendo, por ejemplo, 2,2-bis[4-(met)acrililoixipolietoxifenil]propano en la que m y n satisface la fórmula de  $m + n = 2,6$  (que puede denominarse a continuación en el presente documento D2.6E); 2,2-bis[4-(met)acrililoixipolietoxifenil]propano, que es 2,2-bis[4-(met)acrililoixitrietoxifenil]propano en la que m y n satisfacen la fórmula de  $m + n = 6$  (que puede denominarse a continuación en el presente documento D6E); 2,2-bis[4-(met)acrililoixifenil]propano (m y n satisfacen la fórmula de  $m + n = 0$ ); 2-[4-(met)acrililoixietoxifenil]-2-[4-(met)acrililoixifenil]propano (m y n satisfacen la fórmula de  $m + n = 1$ ); 2,2-bis[4-(met)acrililoixietoxifenil]propano (m y n satisfacen la fórmula de  $m + n = 2$ ); 2-[4-(met)acrililoixidietoxifenil]-2-[4-(met)acrililoixietoxifenil]propano (m y n satisfacen la fórmula de  $m + n = 3$ ); 2,2-bis[4-(met)acrililoixidietoxifenil]propano (m y n satisfacen la fórmula de  $m + n = 4$ ); 2-[4-(met)acrililoixidietoxifenil]-2-[4-(met)acrililoixitrietoxifenil]propano (m y n satisfacen la fórmula de  $m + n = 5$ ), y similares. Además, como el monómero polimerizable (b) puede usarse 2,2-bis[4-(met)acrililoixidipropoxifenil]propano, 2-[4-(met)acrililoixidipropoxifenil]-2-[4-(met)acrililoixitrietoxifenil]propano, 2,2-bis[4-(met)acrililoixipropoxifenil]propano, 2,2-bis[4-(met)acrililoixiisopropoxifenil]propano, o similares. Estos monómeros polimerizables pueden usarse solos en una combinación apropiada de dos o más clases. Entre ellos, se prefieren D2.6E y D6E, desde el punto de vista de las propiedades (propiedad de precipitación o similares) del monómero polimerizable.

El monómero polimerizable (c) no se limita particularmente siempre que el monómero polimerizable sea un monómero polimerizable distinto de (a) y (b). El monómero polimerizable (c) incluye un monómero polimerizable (c-1) sin tener ningún anillo aromático y sin tener ningún grupo hidroxilo, y un monómero polimerizable (c-2) sin tener ningún anillo aromático y que tiene un grupo hidroxilo. El número de los grupos polimerizables es preferiblemente de desde 1 hasta 6, desde el punto de vista de fácil disponibilidad y resistencia mecánica de un producto curado de la composición para uso dental.

El monómero polimerizable (c-1) sin tener ningún anillo aromático y sin tener ningún grupo hidroxilo incluye, por ejemplo, (met)acrilato de metilo, (met)acrilato de etilo, (met)acrilato de propilo, (met)acrilato de isopropilo, (met)acrilato de butilo, (met)acrilato de isobutilo, (met)acrilato de laurilo, (met)acrilato de 2,3-dibromopropilo, (met)acrilamida, di(met)acrilato de etilenglicol, di(met)acrilato de trietilenglicol (que puede denominarse a continuación en el presente documento 3G), di(met)acrilato de 1,2-butanodiol, di(met)acrilato de neopentilglicol, di(met)acrilato de propilenglicol, di(met)acrilato de 1,3-butanodiol, di(met)acrilato de 1,4-butanodiol, di(met)acrilato de 1,6-hexanodiol, di(met)acrilato de 1,10-decanodiol (que puede denominarse a continuación en el presente documento DD), di(met)acrilato de N,N'-(2,2,4-trimetilhexametilen)bis[2-(aminocarboxi)etan-1-ol] (que puede denominarse a continuación en el presente documento UDMA), tetra(met)acrilato de N,N'-(2,2,4-trimetilhexametilen)bis[2-(aminocarboxi)propano-1,3-diol], tri(met)acrilato de trimetilolpropano, tri(met)acrilato de trimetiloletano, tetra(met)acrilato de pentaeritritol, tetrametacrilato de N,N'-(2,2,4-trimetilhexametilen)bis[2-(aminocarboxi)propano-1,3-diol] y 1,7-diacrililoixi-2,2,6,6-tetraacrililoiximetil-4-oxiheptano.

El monómero polimerizable (c-2) sin tener ningún anillo aromático y que tiene un grupo hidroxilo incluye, por

ejemplo, (met)acrilato de 2-hidroxietilo, (met)acrilato de 2-hidroxipropilo, (met)acrilato de 3-hidroxipropilo, (met)acrilato de 1,3-dihidroxipropilo, (met)acrilato de 2,3-dihidroxipropilo, (met)acrilamida de 2-hidroxietilo, 1,2-bis(3-metacrililoiloxi-2-hidroxipropoxi)etano, (met)acrilato de dietilenglicol, di(met)acrilato de pentaeritritol y tri(met)acrilato de tetrametilolmetano. Estos monómeros polimerizables pueden usarse solos o en una combinación correcta de dos o más clases. Por cierto, el término "(met)acrilato" tal como se usa en el presente documento se refiere a un nombre genérico para éster del ácido acrílico y un éster del ácido metacrílico.

Es preferible que el monómero polimerizable (a) tenga un grupo hidrófilo (grupo hidroxilo) que tenga una alta afinidad hacia los dientes, y que el monómero polimerizable esté contenido en una cantidad más alta, desde el punto de vista de propiedades adhesivas para los dientes. Sin embargo, debido a que el monómero polimerizable (a) tiene una alta viscosidad, en un caso en el que el monómero polimerizable esté contenido en una gran cantidad, la composición se vuelve pegajosa, siendo de esta manera desventajosa en operabilidad. El monómero polimerizable (a) está contenido en una cantidad de desde el 10 hasta el 30% en peso, y preferiblemente de desde el 15 hasta el 25% en peso, de todos los monómeros polimerizables, desde el punto de vista de propiedades adhesivas para los dientes.

El monómero polimerizable (b) tiene un índice de refracción de casi el mismo nivel que el monómero polimerizable (a), pero tiene una propiedad de baja viscosidad, en comparación con la del monómero polimerizable (a). El monómero polimerizable (b) puede mejorar la operabilidad de la composición, mientras que mantiene el índice de refracción de todos los monómeros polimerizables en el índice de refracción del monómero polimerizable (a). Sin embargo, si el monómero polimerizable (b) está contenido en una cantidad mayor, la composición tiene una viscosidad rebajada, de modo que se perjudica la conformabilidad. El monómero polimerizable (b) está contenido en una cantidad de desde el 50 al 70% en peso, y preferiblemente de desde el 55 hasta el 70% en peso, de todos los monómeros polimerizables, desde el punto de vista de transparencia y operabilidad.

La razón de un peso del monómero polimerizable (a) con respecto a un peso del monómero polimerizable (b), es decir monómero polimerizable (a)/monómero polimerizable (b), es preferiblemente desde 0,15 hasta 0,6, y más preferiblemente desde 0,25 hasta 0,45, desde el punto de vista de operabilidad de la composición.

El monómero polimerizable (c) tiene las propiedades de un bajo índice de refracción y una baja viscosidad, en comparación con las del monómero polimerizable (a) y el monómero polimerizable (b). Si el monómero polimerizable (c) está contenido en una cantidad demasiado pequeña, la viscosidad de la composición se vuelve alta, de modo que se perjudica la operabilidad. Por otro lado, si el monómero polimerizable (c) está contenido en una cantidad demasiado grande, el índice de refracción de todos los monómeros polimerizables se rebaja, de modo que el equilibrio en los índices de refracción de la composición global se pierde, perjudicando de esa manera un cambio en la transparencia antes y después de la polimerización. El monómero polimerizable (c) está contenido en una cantidad de desde el 10 hasta el 30% en peso, y preferiblemente de desde el 15 hasta el 25% en peso, de todos los monómeros polimerizables, desde el punto de vista de operabilidad. En el presente documento, todos los monómeros polimerizables de la presente invención se constituyen por los monómeros polimerizables (a), (b) y (c).

Debido a que el monómero polimerizable (a), el monómero polimerizable (b) y el monómero polimerizable (c) están contenidos en cantidades de manera que los monómeros polimerizables se mezclan en un buen equilibrio en una razón especificada ajustando la cantidad del monómero polimerizable (b) para ser mayor tal como se mencionó anteriormente, puede obtenerse una composición deseada para uso dental que tiene excelentes propiedades adhesivas y operabilidad, que tiene alta transparencia de un producto curado, y que tiene un cambio pequeño en la transparencia antes y después de la polimerización. La razón de un peso del monómero polimerizable (a) con respecto a un peso del monómero polimerizable (c), es decir monómero polimerizable (a)/monómero polimerizable (c), es preferiblemente desde 0,35 hasta 3, más preferiblemente desde 0,5 hasta 2, y lo más preferiblemente desde 0,7 hasta 1,3, desde el punto de vista de satisfacer la operabilidad de la composición y la reducción de un cambio en transparencia antes y después de la polimerización en un nivel incluso superior.

Además, en la presente invención, los monómeros polimerizables (a) a (c) se mezclan, y puede usarse una mezcla como una composición de monómeros polimerizables. Es preferible que los monómeros polimerizables (a) a (c) se combinen en una cantidad para tener una composición en la que un índice de refracción de un producto curado y polimerizado de la composición de monómeros polimerizables está dentro del intervalo de desde 1,5 hasta 1,7. Especialmente, los monómeros polimerizables se usan para tener una composición en la que el límite inferior del índice de refracción del producto curado y polimerizado es más preferiblemente de 1,52 o más, e incluso más preferiblemente de 1,53 o más. En un caso en el que se necesita una transparencia especialmente alta, es preferible que la composición se diseñe de modo que el índice de refracción del producto curado y polimerizado se aproxime al índice de refracción de partículas de alúmina (d) descrito posteriormente. En el presente documento, el índice de refracción del producto curado y polimerizado de la composición de monómeros polimerizables tal como se usa en el presente documento se mide según el método descrito en los ejemplos expuestos a continuación.

El monómero polimerizable puede polimerizarse según un método conocido, y puede usarse un iniciador de polimerización, tal como un iniciador de fotopolimerización, un iniciador de polimerización térmica o un iniciador de polimerización química, si se necesita.

El iniciador de fotopolimerización incluye, por ejemplo, un agente reductor/ $\alpha$ -dicetona, un agente reductor/cetal, un agente reductor/tioxantona, y similares. Los ejemplos de la  $\alpha$ -dicetona incluyen canforquinona, bencilo, 2,3-pentanodiona, y similares. Los ejemplos del cetal incluyen bencil dimetil cetal, bencil dietil cetal, y similares. Los ejemplos de la tioxantona incluyen 2-clorotioxantona, 2,4-dietiltioxantona, y similares. Los ejemplos del agente reductor incluyen aminas terciarias tales como metacrilato de 2-(dimetilamino)etilo, N,N-bis[(met)acrilooxi]etil-N-metilamina, 4-dimetilaminobenzoato de etilo, 4-dimetilaminobenzoato de butilo, 4-dimetilaminobenzoato de butoxietilo, N-metildietanolamina, 4-dimetilaminobenzofenona, N,N-di(2-hidroxietil)-p-toluidina y dimetilaminofenanol; aldehídos tales como dimetilaminobenzaldehído y tereftalaldehído; compuestos que tienen un grupo tiol, tales como 2-mercaptobenzooxazol, decanotiol, trimetoxisilano de 3-mercaptopropilo y ácido tiobenzoico; y similares. Además, se lleva a cabo una fotopolimerización mediante irradiación con rayos ultravioleta, se prefiere un alquil éter de benzoína, bencil dimetil cetal, o similares. Además, se usa preferiblemente un iniciador de fotopolimerización de óxido de (bis)acilfosfina. Entre los óxidos de (bis)acilfosfina, el óxido de acil fosfina incluye, por ejemplo, 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-tetrametilbenzoildifenilfosfina, di-(2,6-dimetilfenil)fosfonato de benzoilo, y similares. El óxido de bis-acilfosfina incluye, por ejemplo, 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, óxido de (2,5,6-trimetilbenzoil)-2,4,4-trimetilpentilfosfina, y similares. Estos iniciadores de fotopolimerización de óxido de (bis)acilfosfina pueden usarse solos o junto con un agente reductor, tal como diversas aminas, aldehídos, mercaptanos o sulfonatos. El iniciador de fotopolimerización de óxido de (bis)acilfosfina puede usarse también de manera favorable junto con el iniciador de fotopolimerización para luz visible.

Los iniciadores de polimerización térmica incluyen, por ejemplo, peróxidos orgánicos, tales como peróxidos de diacilo, peroxiésteres, peróxidos de dialquilo, peroxicetales, peróxidos de cetona e hidroperóxidos. Los ejemplos específicos de los mismos son de la siguiente manera. Los peróxidos de diacilo incluyen peróxido de benzoilo, peróxido de 2,4-diclorobenzoilo, peróxido de m-toluoilo, y similares. Los peroxiésteres incluyen, por ejemplo, benzoato de t-butilperoxilo, isoftalato de bis-t-butilperoxilo, 2,5-dimetil-2,5-bis(benzoilperoxi)hexano, hexanoato de t-butilperoxi-2-etilo e isopropilcarbonato de t-butilperoxilo. Los peróxidos de dialquilo incluyen, por ejemplo, peróxido de dicumilo, peróxido de di-t-butilo y peróxido de lauroilo. Los peroxicetales incluyen, por ejemplo, 1,1-bis(t-butilperoxi)-3,3,5-trimetilciclohexano. Los peróxidos de cetona incluyen, por ejemplo, peróxido de metil etil cetona. Los hidroperóxidos incluyen, por ejemplo, hidroperóxido de t-butilo, y similares.

Como el iniciador de polimerización química, por ejemplo, se usa preferiblemente un iniciador de polimerización redox, tal como una mezcla de peróxido orgánico/amina o una mezcla de peróxido orgánico/amina/ácido sulfónico (o una sal del mismo). Cuando se usa el iniciador de polimerización redox, es necesario tener una forma de envoltura la que un agente oxidante y un agente reductor se envuelven por separado, para mezclar ambos componentes inmediatamente antes de su uso. Alternativamente, existe un caso en el que los componentes se mezclan con una mezcladora estática o similares y se usan. El agente oxidante incluye los mismos peróxidos orgánicos que el iniciador de polimerización térmica mencionado anteriormente. Como el agente reductor, se usa habitualmente una amina terciaria, y la amina terciaria incluye, por ejemplo, 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-i-propilanilina, N,N-dimetil-4-t-butilanilina, N,N-dimetil-3,5-di-t-butilanilina, N,N-di(2-hidroxietil)-p-toluidina, N,N-di(2-hidroxietil)-3,5-dimetilanilina, N,N-di(2-hidroxietil)-3,4-dimetilanilina, N,N-di(2-hidroxietil)-4-etilanilina, N,N-di(2-hidroxietil)-4-i-propilanilina, N,N-di(2-hidroxietil)-4-t-butilanilina, N,N-di(2-hidroxietil)-3,5-di-i-propilanilina, N,N-di(2-hidroxietil)-3,5-di-t-butilanilina, 4-dimetilaminobenzoato de etilo, 4-dimetilaminobenzoato de n-butoxietilo, 4-dimetilaminobenzoato de (2-metacrilooxi)etilo, trimetilamina, trietilamina, N-metildietanolamina, N-etildietanolamina, N-n-butildietanolamina, N-laurildietanolamina, trietanolamina, metacrilato de (2-dimetilamino)etilo, dimetacrilato de N-metildietanolamina, dimetacrilato de N-etildietanolamina, monometacrilato de trietanolamina, dimetacrilato de trietanolamina y trimetacrilato de trietanolamina.

El iniciador de polimerización se añade en una cantidad de preferiblemente desde 0,01 hasta 10 partes en peso, y más preferiblemente desde 0,1 hasta 5 partes en peso, basándose en 100 partes en peso de todos los monómeros polimerizables.

La composición para uso dental de la presente invención contiene además partículas de alúmina especificadas (d), desde el punto de vista del aumento de la resistencia mecánica.

Las partículas de alúmina (d) en la presente invención satisfacen los dos requisitos:

(i) un índice de refracción ( $n_A$ ) es de desde 1,60 hasta 1,70, y

(ii) una proporción de partículas que tienen tamaños de partícula de desde 0,005 hasta 0,1  $\mu\text{m}$  es del 95% en

número o más.

Las partículas de alúmina existen, además de en forma  $\alpha$ , en transformaciones de cristales de forma  $\gamma$ , forma  $\delta$ , forma  $\chi$ , forma  $\kappa$ , forma  $\rho$ , forma  $\eta$  y forma  $\theta$ . Mientras que la  $\alpha$ -alúmina tiene un índice de refracción de desde 1,76 hasta 1,768, estas transformaciones de cristales tienen índices de refracción dentro del intervalo de desde 1,60 hasta 1,70. Las partículas de alúmina (d) usadas en la presente invención no están limitadas particularmente en la forma cristalina, siempre que las partículas de alúmina tengan un índice de refracción ( $n_A$ ) de desde 1,60 hasta 1,70, y preferiblemente de desde 1,60 hasta 1,65, desde el punto de vista de la reducción de la diferencia con el índice de refracción del polímero. En el presente documento, en un caso en el que se usan dos o más clases de partículas de alúmina que tienen diferentes formas cristalinas, el índice de refracción de las partículas de alúmina globales (d) pueden expresarse como un índice de refracción promedio pesado, y se desea que el índice de refracción promedio sea de desde 1,60 hasta 1,70, y preferiblemente de desde 1,60 hasta 1,65. En la presente memoria descriptiva, el índice de refracción de las partículas de alúmina se mide según el método descrito en los ejemplos expuestos a continuación.

En general, la transparencia de la resina de material compuesto también depende del tamaño de partícula de una carga, además de la diferencia entre los índices de refracción de la carga tal como partículas de alúmina y la composición de monómeros polimerizables. Además, cuanto más se aproximen la longitud de onda de la luz y el tamaño de partícula de las partículas que constituyen la matriz de la composición de uso dental, mayor será la dispersión de la luz, de modo que es probable que la transparencia se rebaje. En vista de lo anterior, cuando se usan partículas que tienen tamaños de partícula que son muy diferentes del intervalo visible de 0,4 a 0,7  $\mu\text{m}$ , el alcance de la dispersión de la luz puede reducirse y puede mantenerse la transparencia; sin embargo, cuando una proporción de partículas que tienen tamaños de partícula que se aproximan al intervalo de luz visible de más de 0,1  $\mu\text{m}$  es grande, existe una tendencia a que sea difícil obtener una transparencia deseada especialmente en las partículas de alúmina. Por otro lado, cuando una proporción de partículas que tienen tamaños de partícula menores de 0,005  $\mu\text{m}$  es grande, la viscosidad de la matriz aumenta, de modo que puede perjudicarse la propiedad de manejo algunos casos. Por tanto, las partículas de alúmina (d) usadas en la presente invención tienen una proporción de partículas que tienen tamaños de partícula de desde 0,005 hasta 0,1  $\mu\text{m}$  de preferiblemente el 95% en número o más, y más preferiblemente el 99% en número o más. En el presente documento, en la presente memoria descriptiva, la proporción del número de las partículas de las partículas de alúmina se mide según el método descrito en los ejemplos expuestos a continuación.

Las partículas de alúmina (d) se obtienen mediante un método de combustión en fase vapor de cloruro de aluminio, comprendiendo el método someter a combustión a una temperatura de desde 400°C hasta 1000°C un gel hidratado de alúmina obtenido mediante hidrólisis de una sal de aluminio orgánica, u obtenido mediante descarga disruptiva de aluminio en agua.

Las partículas de alúmina (d) pueden mezclarse con otros constituyentes tras someter las partículas a un tratamiento de superficie. Como el agente de tratamiento de superficie, se usa un agente de acoplamiento de silano, un agente de acoplamiento orgánico con base de titanato, un agente de acoplamiento orgánico con base de aluminio, o similares. Entre ellos, se prefiere un agente de acoplamiento que tiene un grupo funcional capaz de copolimerizarse con los monómeros polimerizables. Por ejemplo, triclorosilano de vinilo, trietoxisilano de vinilo, trimetoxisilano de  $\gamma$ -metacriloxipropilo, trimetoxisilano de  $\gamma$ -mercaptopropilo, titanato de isopropilisostearoildiacrilo, titanato de tetra(2,2-dialiloximetil-1-butil)bis(ditridecil)fosfito, o similares. Es preferible que estos agentes de acoplamiento se añadan en una cantidad de preferiblemente desde 5 hasta 100 partes en peso, basándose en 100 partes en peso de las partículas de alúmina.

Las partículas de alúmina (d) están contenidas en una cantidad de preferiblemente desde el 7,5 hasta el 50% en peso, y más preferiblemente desde el 7,5 hasta el 20% en peso, de la composición para uso dental.

Cuando la razón del peso de todos los monómeros polimerizables con respecto al peso de las partículas de alúmina, es decir todos los monómeros polimerizables/partículas de alúmina, es menor de 1,5, un cambio en la transparencia antes y después de la polimerización se vuelve mayor, y cuando la razón excede 2,5, el amasado se vuelve difícil, por lo que es probable que rebaje la propiedad de manejo de la composición. En vista de lo anterior, la razón de WM, un peso total de los monómeros polimerizables (a), (b) y (c) y WA, un peso de las partículas de alúmina (d), es decir WA/WM, es preferiblemente desde 1,5 hasta 2,5, y más preferiblemente desde 1,5 hasta 2,0.

Además, es preferible que la composición para uso dental de la presente invención contenga partículas inorgánicas especificadas (e) distintas de las partículas de alúmina (d), desde el punto de vista de mejorar adicionalmente la resistencia mecánica y resistencia al desgaste.

En el caso en el que se usan las partículas inorgánicas (e) distintas de las partículas de alúmina (d) en la presente invención, es deseable seleccionar partículas inorgánicas que satisfagan los tres requisitos:

(iii) un índice de refracción ( $n_F$ ) es de desde 1,50 hasta 1,65,

(iv) una proporción de partículas que tienen tamaños de partícula de desde 0,01 hasta 100  $\mu\text{m}$  es del 95% en volumen o más, y

5 (v) una mediana de tamaño de partícula en volumen es de desde 0,1 hasta 20  $\mu\text{m}$ .

Ya que es preferible que los monómeros polimerizables tengan un índice de refracción tras la polimerización de desde 1,5 hasta 1,7, y que las partículas de alúmina (d) tengan un índice de refracción de desde 1,60 hasta 1,70, es preferible que se seleccionen las partículas inorgánicas (e) que tienen un índice de refracción que se aproxima al intervalo anterior, desde el punto de vista de la transparencia. En otras palabras, se desea que las partículas inorgánicas (e) tengan un índice de refracción de preferiblemente desde 1,50 hasta 1,65, y más preferiblemente desde 1,53 hasta 1,60. El índice de refracción de las partículas inorgánicas (e) tal como se usa en el presente documento se mide según el método descrito en los ejemplos expuestos a continuación.

15 Las partículas inorgánicas (e) que tienen el índice de refracción anterior incluyen materiales de vidrio, tales como vidrio de borosilicato de estroncio ( $n_F = 1,50$ , Ray-Sorb (marca comercial registrada) T-4000, fabricado por Kimble), vidrio de borosilicato de bario ( $n_F = 1,553$ , Ray-Sorb (marca comercial registrada) E-3000, fabricado por Specialty Glass), vidrio de silicato de bario ( $n_F = 1,58$ , Ray-Sorb (marca comercial registrada) E-2000, fabricado por Specialty Glass) y materiales cerámicos de vidrio de lantano ( $n_F = 1,579$ , GM31684, fabricado por Shott); sales inorgánicas  
20 insolubles en agua, tales como hidroxiapatita ( $n_F =$  de 1,61 a 1,63) y fosfato de calcio ( $n_F = 1,60$ ); y similares.

Además, es preferible que el material para las partículas inorgánicas (e) usado en la presente invención tenga radiopacidad. La radiopacidad que es significativa en diagnóstico dental se define como "radiopacidad del mismo nivel que o mayor que una placa de aluminio que tiene el mismo grosor que un material de prueba," y las partículas inorgánicas que proporcionan la radiopacidad tal como se describió anteriormente contienen generalmente un elemento más pesado que el potasio. Las partículas inorgánicas que proporcionan la radiopacidad incluyen, por ejemplo, partículas inorgánicas de calcio, titanio, hierro, cinc, estroncio, circonio, estaño, bario, lantano, cerio, iterbio, hafnio, wolframio, y similares.

30 Además, desde el punto de vista de la operabilidad de conformado de la forma de los dientes y reproducibilidad de la forma (o capacidad de reparación), es preferible que las partículas inorgánicas (e) tengan una proporción de partículas que tienen tamaños de partícula de desde 0,01 hasta 100  $\mu\text{m}$  del 95% en volumen o más, y preferiblemente del 99% en volumen o más, y que las partículas inorgánicas tengan una distribución de tamaño de partícula en la que una mediana de tamaño de partícula en volumen es desde 0,1 hasta 20  $\mu\text{m}$ , y preferiblemente de  
35 desde 0,5 hasta 10  $\mu\text{m}$ . Específicamente, las partículas inorgánicas (e) que tienen una distribución de tamaño de partícula deseado tal como se mencionó anteriormente pueden obtenerse clasificando las partículas inorgánicas, y reduciendo el contenido de polvo fino y partículas gruesas, ajustándose de ese modo para proporcionar una distribución estrecha de tamaño de partícula. En general, cuando una proporción de partículas que tienen tamaños de partícula menores de 0,01  $\mu\text{m}$  es grande, la resistencia mecánica se debilita, y cuando una proporción de  
40 partículas que tienen tamaños de partícula mayores de 100  $\mu\text{m}$  es grande, una pasta de composición para uso dental tiene una textura rugosa, perjudicando de ese modo la propiedad de manejo. En el presente documento, la mediana de tamaño de partícula en volumen y la proporción del número de las partículas de las partículas inorgánicas (e) tal como se usa en el presente documento se miden según los métodos descritos en los ejemplos expuestos a continuación.

45 Las partículas inorgánicas (e) que tienen la distribución de tamaño de partícula anterior pueden producirse fácilmente sometiendo las partículas inorgánicas que tienen el índice de refracción anterior a un procedimiento de triturado o molienda conocido, o a un método de formación de precipitado mediante una reacción de disolución, y la forma de las mismas puede ser cualquiera de forma desintegrada, forma esférica, forma en escamas, pero no se limita particularmente a las mismas.

Las partículas inorgánicas (e) pueden combinarse con otros constituyentes tras someter las partículas a un tratamiento de superficie. El agente de tratamiento de superficie incluye los mismos como los agentes de acoplamiento mencionados anteriormente, y el agente de tratamiento de superficie se añade en una cantidad de  
55 desde 0,1 hasta 10 partes en peso, basándose en 100 partes en peso de las partículas inorgánicas.

Las partículas inorgánicas (e) están contenidas en una cantidad de preferiblemente desde el 30,0 hasta el 87,5% en peso, y más preferiblemente desde el 65,0 hasta el 87,5% en peso, de la composición para uso dental.

60 Además, desde el punto de vista de resistencia mecánica, WM, un peso total de los monómeros polimerizables (a), (b) y (c), WA, un peso de las partículas de alúmina (d), y WF, un peso de las partículas inorgánicas (e) preferiblemente satisfacen la siguiente fórmula:

$$[(WF + WA) / (WM + WA + WF)] \times 100 \geq 80,$$

65

y más preferiblemente satisfacen la siguiente fórmula:

$$[(WF + WA) / (WM + WA + WF)] \times 100 \geq 85.$$

5 Cuando el peso total de las partículas de alúmina (d) y las partículas inorgánicas (e) es del 80% en peso o más del peso total de los monómeros polimerizables (a), (b) y (c), las partículas de alúmina (d), y las partículas inorgánicas (e), la composición para uso dental de la presente invención tiene excelente resistencia mecánica y se prefiere.

10 En la presente invención, aparte de los monómeros polimerizables (a), (b) y (c), las partículas de alúmina (d) y las partículas inorgánicas (e) distintas de las partículas de alúmina (d), un aditivo tal como una carga de material compuesto orgánico-inorgánico, un pigmento, un absorbente ultravioleta, un agente fluorescente o un inhibidor de polimerización pueden combinarse como materiales de partida.

15 El absorbente ultravioleta incluye, por ejemplo, 2-hidroxi-4-t-butoxibenzofenona y 2-(3-t-butil-5-metil-2-hidroxifenil)-5-clorobenzotriazol. El inhibidor de polimerización incluye, por ejemplo, 2,6-di-butilhidroxitolueno, hidroquinona, dibutilhidroquinona, monometil éter de dibutilhidroquinona y 2,6-t-butilfenol.

20 La composición de la presente invención no se limita particularmente siempre que la composición contenga los monómeros polimerizables (a), (b) y (c) en cantidades dadas, y la composición puede producirse fácilmente mediante un método conocido para un experto habitual en la técnica.

### Ejemplos

25 [Índice de refracción]

Se mide el índice de refracción mediante un método de inmersión en líquidos usando un refractómetro de Abbe con rayos D de sodio como fuente de luz, usando diyodometano, bromonaftaleno, salicilato de metilo, dimetilformamida, o similares, cada uno de los cuales se disuelve en azufre, como disolvente. En el presente documento, un índice de refracción tras la polimerización del monómero polimerizable se mide usando un producto obtenido desespumando un monómero polimerizable disuelto en canforquinona, sometiendo un monómero polimerizable desespumado a fotopolimerización para curarlo, y conformando un producto curado en un paralelepípedo rectangular que tiene un tamaño de 5 mm × 10 mm × 20 mm como probeta para ensayos.

35 [Proporción de número de partículas de partículas de alúmina]

Para un monómero polimerizable preparado disolviendo 1 parte en peso de óxido de 2,4,6-trimetilbenzoildifenilfosfina en 100 partes en peso de dimetacrilato de trietilenglicol se mezclan con 10 partes en peso de polvo de alúmina fino, para preparar una pasta. Se somete la pasta a polimerización mediante fotoirradiación para curarla, y se corta en piezas delgadas con un ultramicrotomo un producto curado para preparar probetas en piezas delgadas de muestra, y se someten las probetas en piezas delgadas de muestra a observación de TEM (magnificación: 200.000 veces) y se fotografían con un microscopio electrónico de transmisión (modelo: H-800NA, fabricado por HITACHI, LTD.). Se eligen al azar doscientas partículas que se capturan en la fotografía, y se miden los tamaños de las partículas para obtener una distribución de tamaño de partícula. A partir de la distribución de tamaño de partícula obtenida, se obtiene la proporción del número de las partículas que tienen tamaños de partícula de desde 0,005 hasta 0,1 μm. En el presente documento, el tamaño de partícula del polvo de alúmina fino tal como se usa en el presente documento es una media aritmética de la longitud más larga y la longitud más corta de las partículas.

50 [Mediana de tamaño de partícula en volumen y proporción de número de partículas de partículas inorgánicas distintas de las partículas de alúmina]

La mediana de tamaño de partícula en volumen significa un tamaño de partícula cuya frecuencia de volumen acumulativa calculada en porcentaje en volumen es del 50% calculada desde un lado de tamaño de partícula más pequeño.

55 Aparato de medición: analizador de distribución de tamaño de partícula SALD-2100 (fabricado por Shimadzu Corporation)

60 Software de análisis: WingSALD

Dispersión: hexametafosfato de sodio al 0,2%

65 Condiciones de dispersión: se añade una muestra de 15 mg a 20 ml de la dispersión anterior, y se dispersa la mezcla con un dispersor ultrasónico durante 20 minutos para preparar una dispersión que contiene la muestra.

Condiciones de medición: se mide la dispersión que contiene la muestra anterior para obtener una mediana de tamaño de partícula en volumen y una proporción del número de las partículas que tienen tamaños de partícula de desde 0,01 hasta 100  $\mu\text{m}$ .

#### 5 Ejemplo de producción 1 de partículas de alúmina

10 Se añadieron veinte partes en peso de trimetoxisilano de  $\gamma$ -metacriloxipropilo a 100 partes en peso de partículas de alúmina ultrafinas "Óxido de aluminio C" (fabricado por Nihon Aerosil Co., Ltd.) que tienen un tamaño de partícula promedio de 0,02  $\mu\text{m}$ , una proporción del número de las partículas que tienen tamaños de partícula de desde 0,005 hasta 0,1  $\mu\text{m}$  del 99% en número, y un índice de refracción de 1,65, mientras se mezcla, para proporcionar partículas de alúmina tratadas en superficie A-1. En el presente documento, las partículas de alúmina A-1 tenían un índice de refracción de 1,65.

#### 15 Ejemplo de producción 1 de partículas inorgánicas distintas de las partículas de alúmina

Se trituraron o molieron materiales cerámicos de vidrio de lantano "GM31684" (fabricado por Shott) con un molino de bolas de vibración, para obtener un polvo fino de partículas inorgánicas que tienen una mediana de tamaño de partícula en volumen de 1,2  $\mu\text{m}$  y una proporción del número de las partículas que tienen tamaños de partícula de desde 0,01 hasta 100  $\mu\text{m}$  del 99% en volumen.

20 Se añadieron dos partes en peso de trimetoxisilano de  $\gamma$ -mercaptopropilo a 100 partes en peso del polvo fino de partículas inorgánicas obtenido mientras se mezclaba, para proporcionar partículas inorgánicas tratadas en superficie F-1. En el presente documento, las partículas inorgánicas F- 1 tenían un índice de refracción de 1,58.

#### 25 Ejemplo de producción 2 de partículas inorgánicas distintas de partículas de alúmina

Se trituró o molió fluoroaluminosilicato "GM35429" (fabricado por Shott) con un molino de bolas de vibración, para obtener un polvo fino de partículas inorgánicas que tienen una mediana de tamaño de partícula en volumen de 1,8  $\mu\text{m}$  y una proporción del número de las partículas que tienen tamaños de partícula de desde 0,01 hasta 100  $\mu\text{m}$  del 99% en volumen.

35 Se añadieron dos partes en peso de trimetoxisilano de  $\gamma$ -mercaptopropilo a 100 partes en peso del polvo fino de partículas inorgánicas obtenido mientras se mezclaba, para proporcionar partículas inorgánicas tratadas en superficie F-2. En el presente documento, las partículas inorgánicas F-2 tenían un índice de refracción de 1,47.

#### 35 Ejemplos 1 a 12 y ejemplos comparativos 1 a 11

40 A 100 partes en peso de una mezcla de los monómeros polimerizables (a), (b) y (c) mostrados en la tabla 1 ó 2 se añadieron 0,5 partes en peso de un iniciador de fotopolimerización dl-canforquinona, y 1,0 parte en peso de 4-dimetilaminobenzoato de etilo para disolverlas, para preparar una composición fotopolimerizable.

45 Una mezcla preparada mezclando las partículas de alúmina mostrada en la tabla 1 ó 2, y partículas inorgánicas con 100 partes en peso de la composición fotopolimerizable obtenida y amasando la mezcla hasta una mezcla homogénea se sometió a desespumado a vacío, para proporcionar cada una de las composiciones para uso dental de los ejemplos 1 a 12 y los ejemplos comparativos 1 a 11.

En el presente documento, las abreviaturas mostradas en las tablas 1 y 2 significan lo siguiente.

50 Bis-GMA: 2,2-Bis[4-[3-(met)acrililoiloxi-2-hidroxipropoxi]fenil]propano

Bis3: 2-[4-[3-(met)acrililoiloxi-2-hidroxipropoxi]fenil]-2-[4-[2,3-di(met)acrililoiloxi]fenil]propano

D2.6E: 2,2-Bis[4-(met)acrililoiloxipolietoxifenil]propano (número promedio de moles de grupos etoxilo añadidos: 2,6)

55 D6E: 4-[(Met)acrililoiloxipolietoxifenil]propano (número promedio de moles de grupos etoxilo añadidos: 6)

3G: Di(met)acrilato de trietilenglicol

60 DD: di(met)acrilato de 1,10-decanodiol

UDMA: di(met)acrilato de N,N'-(2,2,4-trimetilhexametileno)bis[2-(aminocarboxi)etan-1-ol]

A continuación, se examinaron las propiedades físicas de las composiciones para uso dental obtenidas según los métodos de ejemplos de prueba 1 a 6 expuestos a continuación. Los resultados se muestran en las tablas 1 y 2.

65

[Ejemplo de prueba 1] (Resistencia a la compresión)

5 Se prepararon probetas para ensayos (4 mm  $\phi$   $\times$  4 mm) de las composiciones de uso dental. Se sumergió cada una de las probetas para ensayos en agua a 37°C durante 24 horas, y se midió la resistencia a la compresión usando un dispositivo de ensayo de tracción (fabricado por Instron) ajustando una velocidad de cabezal transversal a 2 mm/min. En el presente documento, las que tenían una resistencia a la compresión de 350 MPa o más se juzgaron como que eran excelentes.

10 [Ejemplo de prueba 2] (Resistencia a la flexión)

10 Se prepararon probetas para ensayos (2 mm  $\times$  2 mm  $\times$  30 mm) de las composiciones de uso dental. Se sumergió cada una de las probetas para ensayos en agua a 37°C durante 24 horas, y se midió la resistencia a la flexión usando un dispositivo de ensayo de tracción (fabricado por Instron) ajustando una velocidad de cabezal transversal a 1 mm/min según un método de prueba de flexión de tres puntos a una luz de 2,5 mm. En el presente documento, las que tenían una resistencia a la flexión de 120 MPa o más se juzgaron como que eran excelentes.

15 [Ejemplo de prueba 3] (Operabilidad)

20 Se cargó una composición para uso dental en un orificio de 4 mm  $\phi$   $\times$  4 mm, y se evaluó la operabilidad desde el punto de vista de facilidad en la operación de relleno de la propiedad de la pasta según los siguientes criterios de evaluación.

< Criterios de evaluación de operabilidad >

25 A: la pasta no es pegajosa ni seca, siendo excelente en la operación de relleno.

B: aunque la pasta es ligeramente pegajosa o seca, se facilita la operación de relleno.

30 C: la pasta es fuertemente pegajosa o seca, haciendo de ese modo que la operación de relleno sea difícil.

En el presente documento, aquellas con categorías A y B son prácticamente niveles utilizables.

[Ejemplo de prueba 4] (Transparencia)

35 Se prepararon probetas para ensayos (20 mm  $\phi$   $\times$  1,0 mm) de las composiciones de uso dental. Se midieron el brillo (L1) de un caso en el que se midió la cromaticidad colocando una pizarra blanca convencional en el fondo de una probeta para ensayos, y el brillo (L2) de un caso en el que se midió la cromaticidad colocando una pizarra convencional en el fondo de la misma probeta para ensayos, y se calculó la diferencia entre ambas ( $\Delta L = L1 - L2$ ) y se usó como un índice para la transparencia. Cuanto mayor fuese el valor de  $\Delta L$ , mayor era la transparencia, y las que tenían  $\Delta L$  de 15 o más se juzgaron como que eran excelentes.

[Ejemplo de prueba 5] (Cambio en la transparencia antes y después de la polimerización)

45 Se colocó una pasta de composición para uso dental sobre un cubreobjetos, y se colocó una matriz con forma de anillo que tenía un diámetro de 20 mm y un grosor de 1 mm en él, y se colocó un cubreobjetos diferente sobre él, y se presionó, y se midió la transparencia ( $\Delta L1$ ) de la misma manera que en el ejemplo de prueba 4 usando un espectrofotómetro (CM-3610d, fabricado por Minolta). A continuación, se sometió la pasta de composición mantenida entre los cubreobjetos a fotoirradiación durante 20 segundos usando un dispositivo de fotoirradiación para uso dental ("JETLITE 3000" fabricado por MORITA) para polimerizarla, y se midió la transparencia ( $\Delta L2$ ) para determinar la colorimetría de la misma manera. Se expresó el cambio en la transparencia antes y después de la irradiación por  $\Delta(\Delta L) = (\Delta L2 - \Delta L1)$ , y se uso como un índice para determinar el cambio en la transparencia antes y después de la polimerización. En este método de evaluación, cuanto menor sea la  $\Delta(\Delta L)$ , menor es el cambio en la transparencia antes y después de la polimerización.

55 [Ejemplo de prueba 6] (Propiedades adhesivas)

60 Se sometieron suavemente dientes delanteros de bovino a trituración húmeda con papel de carburo de silicio n.º 1000 (fabricado por Nihon Kenshi Co., Ltd.) para exponer una superficie de esmalte o una superficie de dentina, y luego se quitó soplando el agua sobre la superficie con una jeringa de aire para uso dental. A la superficie de esmalte o la superficie de dentina expuesta se le adhirió una cinta adhesiva que tenía un orificio circular que tenía un diámetro de 3 mm, teniendo la cinta adhesiva un grosor de aproximadamente 150  $\mu\text{m}$ , y se aplicó una composición de adhesivo para uso dental (nombre comercial "CLEARFIL S<sup>3</sup>BOND," fabricado por Kuraray Medical Inc.) al orificio circular con un pincel, y se dejó reposar el recubrimiento durante 20 segundos, y luego se secó con una jeringa de aire para uso dental hasta que no había fluidez de la composición de adhesivo para uso dental. A continuación, se 65 fotoirradió el recubrimiento seco con un dispositivo de fotoirradiación para uso dental (nombre comercial "JETLITE

3000,” fabricado por MORITA) durante 10 segundos. Después de esto, se colocó la composición para uso dental preparada anteriormente sobre la composición de adhesivo seca para uso dental, y se cubrió con una película de liberación (nombre comercial “EVAL,” fabricado por Kuraray Co., Ltd.), y se colocó un vidrio deslizante sobre la película de liberación y se presionó. Se sometió la composición a fotoirradiación con el dispositivo de fotoirradiación anterior para uso dental durante 20 segundos, para curar una composición para uso dental. Después de esto, se adhirió un extremo (sección transversal circular) de una barra cilíndrica de acero inoxidable que tenía un diámetro de 5 mm y una longitud de 1,5 cm a una superficie curada usando un cemento de resina para uso dental (nombre comercial “PANAVIA 21,” fabricado por Kuraray Medical Inc.), y se dejó reposar durante 30 minutos, para proporcionar una probeta para ensayos. Se dejó reposar la probeta para ensayos durante 24 horas en un termostato a 37°C en un estado en el que se sumergió la probeta para ensayos en agua destilada en el recipiente de muestra, y después de esto se sometió a medición de la resistencia de unión. En el presente documento, en la medición de resistencia de unión (resistencia a la tracción de la unión), se usó un dispositivo de ensayo de tracción (fabricado por Intron), y se llevó a cabo la medición ajustando una velocidad de cabezal transversal a 2 mm/min. En el presente documento, las que tenían resistencia de unión de 15 MPa o más se juzgaron como que eran excelentes.

[Tabla 1]

Componentes de composiciones para uso dental	Ejemplos											
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
Monómero polimerizable (a)	Bis-GMA	Bis3	Bis-GMA	Bis-GMA								
Monómero polimerizable (b)	D2.6E	D6E	D2.6E									
Monómero polimerizable (c)	3G	DD										
Razón en peso de monómeros (a/b)	0,33	0,33	0,33	0,33	0,33	0,19	0,51	0,45	0,22	0,33	0,33	0,33
Razón en peso de monómeros (a/c)	1,00	1,00	1,00	1,00	1,00	0,65	1,35	2,08	0,48	1,00	1,00	1,00
Razón en peso de monómeros (a/b/c)	20/60/20	20/60/20	20/60/20	20/60/20	20/60/20	13/67/20	27/53/20	27/60/13	13/60/27	20/60/20	20/60/20	20/60/20
Índice de refracción tras el curado	1,56	1,56	1,56	1,56	1,56	1,56	1,56	1,56	1,55	1,56	1,56	1,56
Cantidad formulada (partes en peso) (WM)	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
Partículas de alúmina	A-1											
Cantidad formulada (partes en peso) (WA)	200	130	270	200	200	200	200	200	200	200	200	200
Partículas inorgánicas	F-1	F-1	F-1	F-1	F-2	F-1						
Cantidad formulada (partes en peso) (WF)	800	800	800	190	800	800	800	800	800	800	800	800
Fórmula relacional												
WA/WM	2	1,3	2,7	2	2	2	2	2	2	2	2	2
$[(WA+WF)/(WA+WM+WF)] \times 100$	90,9	90,3	91,5	79,6	90,9	90,9	90,9	90,9	90,9	90,9	90,9	90,9
Propiedades físicas												
Resistencia a la compresión (MPa)	510	480	502	356	490	481	457	445	437	499	437	410
Resistencia a la flexión (MPa)	178	156	183	143	188	170	165	163	175	180	161	169
Operabilidad	A	A	B	A	A	A	B	B	A	A	A	A
Transparencia (ΔL)	24	26	18	23	16	22	21	22	22	22	20	21
Cambio en la transparencia (ΔL) antes y después de la polimerización	0,6	2,0	0,3	0,9	1,2	1,0	0,8	0,9	1,5	0,9	0,8	0,5
Resistencia de unión (MPa)	19	17	18	18	17	15	20	17	16	18	17	15

[Tabla 2]

Componentes de composiciones para uso dental	Ejemplos comparativos										
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
Monómero polimerizable (a)	-	Bis-GMA	-	Bis-GMA	Bis-GMA	Bis-GMA	Bis-GMA	Bis-GMA	Bis-GMA	Bis-GMA	Bis-GMA
Monómero polimerizable (b)	3G, UDMA	3G, UDMA	3G	3G	3G	3G	3G	3G	3G	3G	3G
Monómero polimerizable (c)	0,00	0,25	0,00	0,80	0,08	-	0,13	0,75	0,43	-	0,46
Razón en peso de monómeros (a/b)	0,60/40 <sup>*1</sup>	20,0/80 <sup>*2</sup>	0,70/30	40/50/10	56/5/30	70/0/30	10/80/10	30/40/30	30/70/0	10/50/40	30/65/5
Razón en peso de monómeros (a/c)	1,52	1,53	1,55	1,56	1,55	1,56	1,56	1,55	1,57	1,55	1,57
Índice de refracción tras el curado	1,52	1,53	1,55	1,56	1,55	1,56	1,56	1,55	1,57	1,55	1,57
Cantidad formulada (partes en peso) (WM)	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
Partículas de alúmina	A-1	A-1	A-1	A-1	A-1	A-1	A-1	A-1	A-1	A-1	A-1
Cantidad formulada (partes en peso) (WA)	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200
Partículas inorgánicas	F-1	F-1	F-1	F-2	F-1	F-1	F-1	F-1	F-1	F-1	F-1
Cantidad formulada (partes en peso) (WF)	800	800	380	800	800	800	800	800	800	800	800
Fórmula relacional											
WA/WM	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2
$[(WA+WF)/(WA+WM+WF)] \times 100$	90,9	90,9	85,3	90,9	90,9	90,9	90,9	90,9	90,9	90,9	90,9
Propiedades físicas											
Resistencia a la compresión (MPa)	486	425	203	425	300	473	404	228	255	242	311
Resistencia a la flexión (MPa)	180	165	80	163	155	169	148	125	131	120	152
Operabilidad	A	C	B	B	A	C	B	A	C	A	B
Transparencia (ΔL)	22	25	21	10	21	20	10	19	5	23	8
Cambio en la transparencia (ΔL) antes y después de la polimerización	0,3	0,8	3	0,5	3,2	1,3	1	4,5	0,4	8	0,6
Resistencia de unión (MPa)	8	11	4	17	7	16	9	16	12	10	14

\*1: la razón del peso de 3G con respecto al peso de UDMA, es decir 3G/UDMA, es de 20/20.

\*2: la razón del peso de 3G con respecto al peso de UDMA, es decir 3G/UDMA, es de 20/60.

Puede observarse a partir de los resultados anteriores que las composiciones para uso dental de los ejemplos tienen cambios más pequeños en la transparencia antes y después de la polimerización y resistencia mecánica, propiedades adhesivas y operabilidad excelentes, en comparación con las composiciones para uso dental de los ejemplos comparativos, especificando las clases y las razones composicionales composicional de los monómeros polimerizables. En particular, puede observarse a partir de la comparación de los ejemplos 1 a 4 que incluso con los mismos componentes de los monómeros polimerizables, las que tienen contenidos mayores de las partículas de alúmina y de las partículas inorgánicas tienen una resistencia mecánica más fuerte, y las que tienen un contenido más pequeño de las partículas de alúmina tienen excelente operabilidad. Además, puede observarse a partir de la comparación de los ejemplos 1 a 3 que las que tienen contenidos mayores de las partículas de alúmina tienen cambios más pequeños en la transparencia antes y después de la polimerización. Por otro lado, puede observarse que en el ejemplo comparativo 1 en el que se usa UDMA que no tiene un anillo aromático o un grupo hidroxilo en lugar del monómero polimerizable (a), se debilita la resistencia de unión, que en el ejemplo comparativo 9 en el que solo se usan los monómeros polimerizables (a) y (b), se rebaja la transparencia de las composiciones, y que en los ejemplos comparativos 4, 5, 7, 8, 10 y 11 en los que se usan los monómeros polimerizables (a), (b) y (c) pero el contenido de cada uno está fuera del intervalo definido, se deterioran diversas propiedades físicas, tales como que la transparencia de las composiciones es inferior, y los cambios en transparencia antes y después de la polimerización son mayores. Se sugiere a partir de los resultados anteriores que debido a que la composición contiene los monómeros polimerizables (a), (b) y (c) en una razón especificada bien equilibrada en la que el monómero (b) está contenido en una cantidad mayor, la composición tiene resistencia mecánica, propiedades adhesivas y operabilidad excelentes, y además permite a la composición tener una alta transparencia y un cambio pequeño en la transparencia antes y después de la polimerización. En particular, como queda claro a partir de la comparación de los ejemplos 1, 8 y 9, en un caso en el que a/c es 1, incluso con los mismos componentes usados, puede observarse que la composición muestra las propiedades físicas más excelentes.

#### 25 **Aplicabilidad industrial**

La composición para uso dental de la presente invención puede usarse de manera adecuada como un producto capaz de sustituir una parte o la totalidad de un diente natural en el campo de la terapia dental.

## REIVINDICACIONES

1. Composición adecuada para uso dental que comprende
- 5 un monómero polimerizable (a) que tiene un anillo aromático y un grupo hidroxilo, que es un compuesto que tiene una estructura principal de bisfenol A y un grupo hidroxilo,
- un monómero polimerizable (b) que tiene un anillo aromático sin tener ningún grupo hidroxilo, que es un compuesto que tiene una estructura principal de bisfenol A sin tener ningún grupo hidroxilo, y
- 10 un monómero polimerizable (c) distinto de los monómeros polimerizables (a) y (b),
- en la que la composición para uso dental comprende los monómeros polimerizables (a), (b) y (c) en una cantidad de desde el 10 hasta el 30% en peso, desde el 50 hasta el 70% en peso y desde el 10 hasta el
- 15 30% en peso, respectivamente, de todos los monómeros polimerizables; y
- la composición para uso dental comprende además partículas de alúmina (d) que satisfacen los siguientes requisitos (i) y (ii):
- 20 (i) el índice de refracción ( $n_A$ ) es desde 1,60 hasta 1,70; y
- (ii) la proporción de partículas que tienen tamaños de partícula de desde 0,005 hasta 0,1  $\mu\text{m}$  es del 95% en número o más.
- 25 2. Composición para uso dental según la reivindicación 1, en la que la razón de WM, el peso total de los monómeros polimerizables (a), (b) y (c), y WA, el peso de las partículas de alúmina (d), es decir WA/WM, es de desde 1,5 hasta 2,5.
- 30 3. Composición para uso dental según la reivindicación 1 ó 2, que comprende además partículas inorgánicas (e) distintas de las partículas de alúmina (d), en la que las partículas inorgánicas (e) satisfacen los siguientes requisitos (iii), (iv) y (v):
- (iii) el índice de refracción ( $n_F$ ) es de desde 1,50 hasta 1,65;
- 35 (iv) la proporción de partículas que tienen tamaños de partícula de desde 0,01 hasta 100  $\mu\text{m}$  es del 95% en volumen o más; y
- (v) la mediana de tamaño de partícula en volumen es de desde 0,1 hasta 20  $\mu\text{m}$ .
- 40 4. Composición para uso dental según la reivindicación 3, en la que WM, el peso total de los monómeros polimerizables (a), (b) y (c), WA, el peso de las partículas de alúmina (d), y WF, el peso de las partículas inorgánicas (e) satisfacen la siguiente fórmula:

$$[(WF + WA) / (WM + WA + WF)] \times 100 \geq 80.$$

45