



\*PI 04125797\*  
\*PI 04125797\*

**REPÚBLICA FEDERATIVA DO BRASIL**  
MINISTÉRIO DO DESENVOLVIMENTO, INDÚSTRIA E COMÉRCIO EXTERIOR  
**INSTITUTO NACIONAL DA PROPRIEDADE INDUSTRIAL**

## CARTA PATENTE Nº PI 0412579-7

O INSTITUTO NACIONAL DA PROPRIEDADE INDUSTRIAL concede a presente PATENTE DE INVENÇÃO, que outorga ao seu titular a propriedade da invenção caracterizada neste título, em todo o território nacional, garantindo os direitos dela decorrentes, previstos na legislação em vigor.

(21) Número do Depósito: PI 0412579-7

(22) Data do Depósito: 30/07/2004

(43) Data da Publicação do Pedido: 17/02/2005

(51) Classificação Internacional: A61K 6/00; A61K 6/087

(30) Prioridade Unionista: 31/07/2003 EP 03 017390.0; 10/03/2004 US 60/551,347

(54) Título: COMPOSIÇÃO DE SELAGEM DE CANAL DE RAIZ DENTÁRIA.

(73) Titular: DENTSPLY DETREY GMBH, Sociedade Alemã. Endereço: De-Trey-Strasse 1, 78467 Konstanz, Alemanha (DE).

(72) Inventor: JOACHIM E. KLEE

Prazo de Validade: 10 (dez) anos contados a partir de 16/12/2014, observadas as condições legais.

Expedida em: 16 de Dezembro de 2014.

Assinado digitalmente por:

**Júlio César Castelo Branco Reis Moreira**  
Diretor de Patentes



Relatório Descritivo da Patente de Invenção para "**COMPOSIÇÃO DE SELAGEM DE CANAL DE RAIZ DENTÁRIA**".

Campo da invenção

A presente invenção refere-se a uma composição de selagem de canal de raiz dentária curável por polimerização de adição, na ausência de um catalisador de polimerização. A composição de selagem de canal de raiz dentária da invenção é fornecida na forma de uma composição de dois componentes.

Fundamentos da Técnica

Composições de selagem de canal de raiz dentária são frequentemente aplicadas no canal da raiz através de um canal de agulha. Devido às pequenas dimensões do canal de agulha, é preciso que as composições tenham baixa viscosidade. Alternativamente, composições de selagem de canal de raiz dentária são aplicadas usando lentulos ou pontas de guta percha. Assim, a viscosidade deve ser baixa de modo que possam ser formados filmes finos. Independente da técnica de aplicação, a viscosidade do material deve ser baixa o bastante de modo que a composição possa entrar nos canais de dentina do canal da raiz.

A aplicação de composições de selagem de canal de raiz dentária é verificada usando procedimentos de raios X. Devido à exigência de radioopacidade, as composições precisam conter uma quantidade substancial de um agente de enchimento radioopaco.

Composições de selagem de canal de raiz dentária são descritas da WO 02/13767 que divulgam nos exemplos de aplicação um sistema de dois componentes pasta/pasta. O sistema de dois componentes pasta/pasta é baseado na polimerização por adição de quantidades equimolares de diaminas de baixo peso molecular e diacrilatos de baixo peso molecular, opcionalmente na presença de um diluente reativo para ajuste da viscosidade da composição.

No entanto, a presença de amins de baixo peso molecular na composição de selagem do canal de raiz dentária leva a severas desvantagens. Efeitos citotóxicos são frequentemente observados devido à lixiviação

de tais amins do canal de raiz. Além disso, as composições curadas de WO 02/13767 mostram uma considerável solubilidade onde o problema de citotoxicidade é agravado e outros problemas de aplicação são criados. Finalmente, a alta pressão de vapor de amins de baixo peso molecular e a alta taxa de penetração através de embalagens plásticas torna as composições de WO 02/13767 problemáticas para aplicação industrial.

Poli-aminoésteres especificamente descritos em WO 02/13767 são altamente viscosos e exigem o uso de uma quantidade substancial de diluente reativo para reduzir a viscosidade. No entanto, diluentes reativos não podem ser polimerizados por polimerização de adição, mas exigem a presença de um iniciador de polimerização.

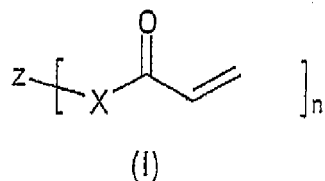
WO 02/13767 não descreve um composto acrilato di- ou polifuncional ou um composto maleimida di- ou polifuncional que seja capaz de sofrer poliadição.

É o problema da presente invenção prover uma composição de selagem de canal de raiz dentária tendo baixa viscosidade, baixa citotoxicidade e baixa solubilidade enquanto apresenta propriedades mecânicas excelentes como baixo encolhimento e não dando lugar a problemas de manuseio durante a fabricação e aplicação.

## 20 Sumário da Invenção

Este problema é resolvido de acordo com as reivindicações. A presente invenção provê uma composição de selagem de canal de raiz dentária curável na ausência de um iniciador de polimerização, que compreende (i) um prepolímero terminado em grupo amina tendo uma viscosidade a 23°C de menos de 100 Pas, que é obtível por reação de

(a) um mol de um composto da seguinte fórmula (I)

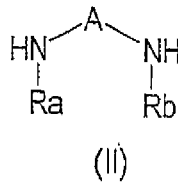


em que

X representa um átomo de nitrogênio ou de oxigênio;

Z representa um grupo hidrocarbônico  $C_{2-16}$  alifático saturado n-valente ou um grupo hidrocarbônico  $C_{3-6}$  cicloalifático saturado divalente, os grupos podendo conter 1 a 6 átomos de oxigênio, que podem ser substituídos por 1 a 6 grupos  $C_{1-4}$  alquila; e n representa um inteiro de 2 a 6; e

- 5 (b) pelo menos n moles de um ou mais compostos da fórmula (II)



em que

- A representa um grupo hidrocarbônico  $C_{2-16}$  alifático saturado divalente ou um grupo hidrocarbônico  $C_{3-6}$  cicloalifático saturado divalente, os grupos podendo conter 1 a 6 átomos de oxigênio e podendo ser substituídos por 1 a 6 grupos  $C_{1-4}$  alquila;

$R_a$  e  $R_b$  são iguais ou diferentes e representam

- um átomo de hidrogênio, um grupo  $C_{1-6}$  alquila ou um grupo  $C_{3-14}$  cicloalquila, que podem ser substituídos por um ou mais membros do grupo selecionado de um grupo  $C_{1-4}$  alquila, um grupo  $C_{1-4}$  alcóxi, um grupo fenila e um grupo hidróxi;

- ou de fórmula (II) em combinação com um ou mais compostos de fórmula  $RNH_2$  em que R representa um grupo  $C_{1-6}$  alquila ou grupo  $C_{3-14}$  cicloalquila, que pode ser substituído por um ou mais membros do grupo selecionado entre um grupo  $C_{1-4}$  alquila, um grupo  $C_{1-4}$  alcóxi, um grupo fenila e um grupo hidróxi, e/ou em combinação com um composto di- ou poliamínico adicional.

- (ii) um composto capaz de sofrer poliadição com o prepolímero terminado em grupo amina (i);

- 25 (iii) 40 a 85 % em peso de uma carga para prover uma radioopacidade mínima de pelo menos 3 mm / mm Al.

A composição de selagem de canal de raiz dentária está na forma de uma composição de dois componentes em que um primeiro componente contém o prepolímero terminado em amina (i) e opcionalmente carga

(iii), e um segundo componente contém o composto (ii) capaz de sofrer poliadicação com o prepolímero terminado em grupo amina (i) e opcionalmente carga (iii).

Nas fórmulas, X representa um átomo de nitrogênio ou de oxigênio.

Nas fórmulas, Z é um grupo hidrocarbônico  $C_{2-16}$  alifático, saturado, n-valente ou um grupo hidrocarbônico  $C_{3-6}$  cicloalifático saturado divalente, grupos esses que podem ser baseados em grupos alquilenos lineares ou ramificados tendo 2 a 16 átomos de carbono, preferivelmente 4 a 10 átomos de carbono, ou grupos cicloalquilenos tendo 3 a 6 átomos de carbono, preferivelmente 4 a 6 átomos de carbono. Z pode ser divalente ( $n = 2$ ), trivalente ( $n=3$ ), tetravalente ( $n=4$ ), pentavalente ( $n = 5$ ), ou hexavalente ( $n = 6$ ). Preferivelmente Z é divalente ou trivalente. O grupo hidrocarbônico pode ser substituído por um ou mais grupos  $C_{1-4}$  alquila. Exemplos específicos dos grupos alquila são metila, etila, n-propila, i-propila, n-butila, i-butila, ou t-butila. O grupo hidrocarbônico pode conter 1 a 6 átomos de oxigênio na cadeia carbônica ligando os substituintes de n-acrilato ou em uma cadeia lateral. Preferivelmente, o grupo hidrocarbônico  $C_{2-16}$  alifático ou cicloalifático é altamente flexível devido à presença de ligações éter e à ausência de grupos volumosos. Em uma modalidade preferida, Z é um grupo divalente baseado em um grupo alquila de cadeia reta que pode conter ligações éter. Especificamente, Z pode ser um grupo  $C_{2-6}$  alquilenos.

Na fórmula, A é um grupo hidrocarbônico  $C_{2-16}$  alifático saturado divalente ou um grupo hidrocarbônico  $C_{3-6}$  cicloalifático saturado divalente, grupos esses que podem ser baseados em grupos alquilenos lineares ou ramificados tendo 2 a 16 átomos de carbono, preferivelmente 4 a 10 átomos de carbono, ou grupos cicloalquilenos tendo 3 a 6 átomos de carbono, preferivelmente 4 a 6 átomos de carbono. O grupo hidrocarbônico pode ser substituído por um ou mais grupos  $C_{1-4}$  alquila. Exemplos específicos dos grupos alquila são metila, etila, n-propila, i-propila, n-butila, i-butila ou t-butila. O grupo hidrocarbônico pode conter 1 a 6 átomos de oxigênio na cadeia carbônica que liga os grupos amina ou em uma cadeia lateral. Preferivelmente

o grupo hidrocarbônico  $C_{2-16}$  alifático saturado divalente ou o grupo hidrocarbônico  $C_{3-6}$  cicloalifático saturado divalente é altamente flexível, devido à presença de ligações éter e a ausência de grupos volumosos. Em uma modalidade preferida, A é um grupo divalente baseado em um grupo alquilenos de cadeia reta que pode conter ligações éter. Em uma modalidade preferida, A pode ser  $-(CH_2)_2O(CH_2)_2O(CH_2)_2-$ .

$R_a$  e  $R_b$  podem ser iguais ou diferentes e representam um átomo de hidrogênio, um grupo  $C_{1-6}$  alquila ou um grupo  $C_{3-14}$  cicloalquila. Exemplos de grupo  $C_{1-6}$  alquila podem incluir grupos alquila lineares ou ramificados tendo 1 a 6 átomos de carbono, preferivelmente 1 a 4 átomos de carbono, por exemplo, metila, etila, n-propila, i-isopropila, n-butila, i-isobutila, s-butila, t-butila, n-pentila, isopentila e n-hexila. Exemplos de grupo  $C_{3-14}$  cicloalquila podem incluir aqueles tendo 3 a 14 átomos de carbono, por exemplo, ciclopropila, ciclobutila, ciclopentila e ciclohexila. O grupo  $C_{1-6}$  alquila e o grupo  $C_{3-14}$  cicloalquila podem opcionalmente ser substituídos por um ou mais membros do grupo selecionado de um grupo  $C_{1-4}$  alquila, um grupo  $C_{1-4}$  alcóxi, um grupo fenila e um grupo hidróxi. Exemplos de grupo  $C_{1-4}$  alquila podem incluir grupos alquila lineares ou ramificados tendo 1 a 4 átomos de carbono, por exemplo, metila, etila, n-propila, isopropila, n-butila, isobutila, s-butila, t-butila. Exemplos de grupo  $C_{1-4}$  alcóxi podem incluir grupos alcóxi tendo 1 a 4 átomos de carbono, por exemplo, metóxi, etóxi, n-propóxi, isopropóxi, n-butóxi, isobutóxi, s-butóxi e t-butóxi. Preferivelmente  $R_a$  e  $R_b$  são hidrogênio.

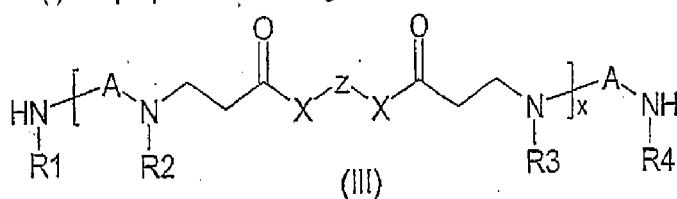
Na preparação do prepolímero, o composto de fórmula (II) pode ser opcionalmente usado em combinação com um composto amina de fórmula  $RNH_2$ , em que R representa um grupo  $C_{1-6}$  alquila ou um grupo  $C_{3-14}$  cicloalquila, que pode ser substituído por um ou mais membros do grupo selecionado entre um grupo  $C_{1-4}$  alquila, um grupo  $C_{1-4}$  alcóxi, um grupo fenila e um grupo hidróxi, ou um composto di- ou poliamínico adicional. A amina da fórmula  $R_aNH_2$  e/ou o composto di- ou poliamínico adicional pode ser usado para substituir até  $n/1,5$  mol, preferivelmente  $n/20$  a  $n/2$  moles do composto de fórmula (II) usado na reação para preparação do prepolímero,

em que n é como definido acima. A quantidade do componente usado em combinação com a diamina da fórmula (II) deve ser escolhido de modo que a viscosidade do prepolímero não exceda 100 Pa\*s, preferivelmente 80 Pa\*s, mais preferivelmente 20 Pa\*s.

#### 5 Descrição das modalidades preferidas

Em uma modalidade preferida, a composição de selagem de canal de raiz dentária contém

(i) um prepolímero da seguinte fórmula (III)



em que

10           A    representa um grupo hidrocarbônico C<sub>2-16</sub> alifático saturado divalente ou um grupo hidrocarbônico C<sub>3-6</sub> cicloalifático saturado divalente, os grupos podendo conter 1 a 6 átomos de oxigênio e podendo ser substituídos por 1 a 6 grupos C<sub>1-4</sub> alquila;

              X    representa um átomo de nitrogênio ou de oxigênio.

15           Z    representa um grupo hidrocarbônico C<sub>2-16</sub> alifático saturado divalente ou um grupo hidrocarbônico C<sub>3-6</sub> cicloalifático saturado divalente, os grupos podendo conter 1 a 6 átomos de oxigênio, e podendo ser substituídos por 1 a 6 grupos C<sub>1-4</sub> alquila; e

20           R1, R2, R3 e R4, que podem ser iguais ou diferentes, representam um átomo de hidrogênio, um grupo C<sub>1-4</sub> alquila ou um grupo C<sub>3-14</sub> cicloalquila, que pode ser substituído por um grupo C<sub>1-4</sub> alquila, um grupo C<sub>1-4</sub> alcóxi, um grupo fenila, ou um grupo hidróxi; e x é um inteiro de 1 a 8;

              (ii) um composto capaz de sofrer poliadicação com o prepolímero terminado em grupo amina (i);

25           (iii) 40 a 85 % em peso de um agente de enchimento para prover uma radioopacidade mínima de pelo menos 3 mm/mm Al.

A composição de selagem de canal de raiz dentária da invenção contém 40 a 85 % em peso de uma carga para prover uma radioopacidade

mínima de pelo menos 3 mm/mm Al. A carga contém  $\text{La}_2\text{O}_3$ ,  $\text{ZrO}_2$ ,  $\text{BiPO}_4$ ,  $\text{CaWO}_4$ ,  $\text{BaWO}_4$ ,  $\text{SrF}_2$ ,  $\text{Bi}_2\text{O}_3$ . A radioopacidade da composição curada da invenção é de pelo menos 3 mm/mm Al, preferivelmente de pelo menos 5 a 7 mm/mm Al, e no máximo da preferência de pelo menos 7 mm/mm Al.

5 Preferivelmente, a composição de selagem de canal de raiz dentária da invenção não contém um diluente, em particular um diluente reativo, tendo viscosidade menor do que a viscosidade do prepolímero da invenção. Além disso, a composição de selagem do canal de raiz dentária não precisa conter um iniciador de polimerização. Em uma modalidade preferida, a composição de selagem de canal de raiz dentária consiste essencialmente nos  
10 componentes (i) a (iii). Uma composição de selagem do canal de raiz dentária consistindo essencialmente nos componentes (i) a (iii) pode conter aditivos comuns usados no campo da odontologia como colorantes, antibióticos e agentes de liberação de íon, em uma quantidade total de não mais que 2  
15 % em peso, preferivelmente não mais que 10 % em peso da composição.

Uma modalidade preferida da composição de selagem de canal de raiz dentária da presente invenção contém 40 a 85 % em peso de um agente de enchimento e 15 a 60% em peso do prepolímero com terminação amina e o composto capaz de sofrer poliadição com o prepolímero com terminação amina. O prepolímero com terminação amina usado na presente  
20 invenção é usualmente uma mistura de oligômeros. Assim, a quantidade do prepolímero com terminação amina e o composto capaz de sofrer poliadição com o prepolímero com terminação amina é calculado com base na mistura de oligômeros.

25 A composição de selagem de canal de raiz dentária da invenção é uma composição de dois componentes que é misturada antes do uso. A composição de dois componentes é preferivelmente um sistema pó / líquido, um sistema pó / pasta, um sistema pasta / pasta ou um sistema líquido / pasta. O sistema pasta / pasta ou sistema líquido / pasta pode ser aplicado por  
30 um aplicador em que ambos os componentes são misturados por um misturador estático.

A presente invenção é baseada no reconhecimento de que a

adição de Michael de diaminas específicas a compostos di- e oligoacrilato específicos provê prepolímeros tendo baixa viscosidade enquanto ao mesmo tempo elimina os problemas associados com a presença de amins de baixo peso molecular. Surpreendentemente, a cinética de reação da adição de Michael de diaminas com acrilatos difere da cinética de reação de outras reações de adição de amins de modo que os produtos de reação não são materiais reticulados ou materiais de alto peso molecular altamente viscosos, mas prepolímeros não-reticulados tendo baixa viscosidade. Parece que a diferença das velocidades de reação entre amins primárias e secundárias com compostos acrilato é a base para a possibilidade de obtenção das composições da presente invenção. Com base na cinética de reação específica de amins primárias da presente invenção, o teor de amins primárias residuais no prepolímero ou na composição de selagem de canal de raiz dentária da presente invenção é substancialmente reduzido quanto comparado a sistemas usando grupos terminais funcionais que mostram a mesma reatividade perante amins primárias e secundárias, ver J. Klee, H.-H. Hörhold, J. Raddatz; *Acta Polymerica*, 41 (1990) 557-560; "Telechelic Prepolymere aus DGEBA und disekundären Diaminen. Unvernetzte Epoxid-Amin-Additionspolymere, 29."; J.E. Klee; *Acta Polym.* 45 (1994) 73-82; "Telechelic prepolymers and macromonomers by step growth processes" (39); J. E. Klee, R.-E Grützner, H-H. Hörhold; *Macromol. Chem. Phys.* 197 (1996) 2305 – 2323; polímeros de adição arilamina linear / bis-2,2-[4-(2,3-epoxipróxi)-fenil]propano – síntese e propriedades. Polímeros de adição epóxido-amina não-reticulados, 44". Amins primárias reagem com muito mais rapidez quando comparadas as amins secundárias, em particular na reação com acrilatos ou acrilamidas di- ou polifuncionais ou bis- ou polimaleimidas.

O prepolímero contido na composição de selagem de canal de raiz dentária da presente invenção tem uma viscosidade a 23°C de menos de 100 Pa\*s. Preferivelmente, a viscosidade do prepolímero fica na faixa de 1 a 80 Pa\*s, mais preferivelmente de 1 a 20 Pa\*s. Se a viscosidade for alta demais, então será difícil aplicar a composição através do canal de uma agulha. Se a viscosidade for baixa demais, então será difícil manusear a compo-

sição.

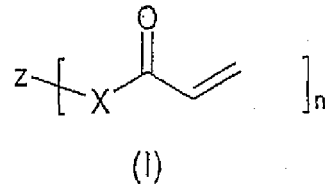
A composição de selagem do canal de raiz dentária da presente invenção é curável na ausência de um iniciador de polimerização. Mecanismo de cura é baseado em uma reação de adição entre o prepolímero terminado em amina (i) e um composto capaz de sofrer poliadição com o prepolímero terminado em amina (i). O composto capaz de sofrer poliadição com o prepolímero terminado em amina (i) é um acrilato di- ou polifuncional, ou maleimida di- ou polifuncional. Acrilatos di- ou polifuncionais e maleimidados di- ou polifuncionais são preferidas com relação à seletividade na reação com grupos de aminas primárias e secundárias. O composto capaz de sofrer poliadição com o prepolímero terminado em amina (i) pode ser igual ou diferente do composto definidos pela fórmula (i) em que X e Z são como definido acima e n representa um inteiro de 2 a 6.

O uso dos prepolímeros terminados em amina específicos elimina ou pelo menos reduz fortemente os problemas associados com aminas de baixo peso molecular. Além disso, é surpreendente que o uso de prepolímeros específicos proporcione uma composição de selagem de canal de raiz dentária com baixa viscosidade. Para isto, é essencial que sejam evitadas porções rígidas dos prepolímeros.

As composições da presente invenção podem ser aplicadas a um canal de raiz usando técnicas convencionais. Especificamente, as composições da presente invenção podem ser aplicadas por meio do canal de uma seringa no canal da raiz. Além disso, as composições da presente invenção podem também ser usadas para a fabricação de cones de canal de raiz pré-fabricados. Se cones feitos a partir das composições da invenção são usados em combinação com a composição de selagem de canal de raiz dentária da invenção respectiva, compatibilidade dos cones com a composição de selagem podem ser garantidas, sendo obtido um selo estanque. O produto curado obtido com a composição de acordo com a invenção possui propriedades mecânicas superiores, em particular no que diz respeito à flexibilidade que é essencial para a aplicação como composição de selagem de canal de raiz.

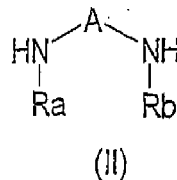
Agora, será divulgado o processo geral para preparação de um prepolímero terminado em amino. O prepolímero pode ser obtido reagindo

(a) um mol de um composto da seguinte fórmula (I)



em que X e Z são como definidos acima e n representa um inteiro de 2 a 6; e

5 (b) pelo menos n moles de um ou mais compostos da seguinte fórmula (II)



em que A, R<sub>a</sub> e R<sub>b</sub> são como definidos acima

A reação pode ser realizada na ausência de um solvente ou na presença de um solvente adequado. A temperatura da reação fica preferivelmente na faixa de 10°C a 150°C, mais preferivelmente na faixa de 20°C a 80°C. O tempo de reação depende da temperatura e da reatividade do sistema de reação e fica usualmente na faixa de horas por vários dias.

O término da reação pode ser verificado por métodos convencionais como espectro IV onde o final da reação é alcançado quando todas as ligações duplas carbono-carbono de acrílico desapareceram. No caso em que a reação é realizada na ausência de um solvente, os prepolímeros obtidos pela reação de compostos (I) e (II) podem ser usados como estão sem processamento adicional da mistura de reação. Na preparação do prepolímero, o composto de fórmula (II) pode ser usado em combinação com uma amina da fórmula R<sub>a</sub>NH<sub>2</sub> em que R<sub>a</sub> é como definido acima. A amina da fórmula R<sub>a</sub>NH<sub>2</sub> pode ser usada para substituir de n/10 a n/2 moles do composto de fórmula (II) usado na reação para preparação do prepolímero.

A presente invenção será agora explicada com referência a exemplos específicos. Viscosidades dinâmicas foram medidas usando um reômetro Bohlin CS50 a 23°C.

ExemplosExemplo 1

Em um frasco de 250 ml equipado com agitador e condensador 22,955 g (154,88 mmoles) de 2,2-(etilenodióxi)-dietileno amina, 15,350 g  
 5 (77,44 mmoles) diacrilato de butanodiol foram homogeneamente misturados e agitados a 20 a 25°C por 3 dias. Depois disso não foram mais encontradas duplas ligações no espectro IV a 1609 e 809  $\text{cm}^{-1}$ . Rendimento: 37,764 g (100 % d. Th),  $\eta$  23°C = 5,865  $\pm$  0,148 Pa\*s (após estocagem por 1 mês em temperatura ambiente).

10 2,036 g (4,197 mmoles) do prepolímero preparado foram homogeneamente misturados com 2,149 g (4,197 mmoles) de bisfenol A diacrilato etoxilado (SR-601, Sartomer) e reagidos a 37°C. A mistura tem um tempo de gel de 3 horas a 37°C.

Exemplo 2

15 Em um frasco de 250 ml equipado com agitador e condensador 15,000 g (77,19 mmoles) de 3,(4),8,(9)-bis(aminometil)-tríciclo-5.2.1.0<sup>2,6</sup>-decano, 11,441 g (77,19 mmoles) de 2,2-(etilenodióxi)-dietileno amina e 15,301 g (77,19 mmoles) de diacrilato de butanodiol foram homogeneamente misturados e agitados por 3 dias à temperatura ambiente. Depois disso, não  
 20 foram mais encontradas duplas ligações no espectro IV a 1609 e 809  $\text{cm}^{-1}$ . Rendimento : 41,742 g (100 % d. Th),  $\eta$  23°C = 9,815  $\pm$  0,174 Pa\*s.

25 2,586 g (4,782 mmoles) do prepolímero preparado foram homogeneamente misturados com 2,449 g (4,782 mmoles) de bisfenol A diacrilato etoxilado (SR-601, Sartomer) e reagidos a 37°C. A mistura tem um tempo de gel de 6 a 16 horas a 37°C e se torna sólido.

Exemplo de Aplicação 1 (Pó / Líquido)

1,000 g de prepolímero terminado em amina preparado por reação de adição de 2,2-(etilenodióxi) dietileno amina e diacrilato de butanodiol do exemplo 1 e 3,050 g de um pó composto de diacrilato de ciclohexano dimetanol (12,594% em peso), tungstato de cálcio (50,174% em peso), e óxido de zircônio (12,544% em peso) foram homogeneamente misturados e poli-  
 30 merizados por 3 horas.

### Exemplo de Aplicação 2 (Pasta / Pasta)

Pasta de acrilato: 5,000 g (9,77 mmoles) de diacrilato de bisfenol A (SR-601, Sartomer), 9,917 g de tungstato de cálcio, 2,479 g de óxido de zircônio, 0,050 g de arosil A 200 e 0,025 g de óxido de ferro (III) foram homogeneamente misturados.

Pasta de prepolímero: 4,830 g (9,77 mmoles) de prepolímero terminado em amina de acordo com o exemplo 6, 9,500 g de tungstato de cálcio, 2,375 g de óxido de zircônio e 0,536 g de arosil A 200 foram homogeneamente misturado.

Imediatamente antes da aplicação, 1,00 g da pasta de acrilato e 0,987 da pasta de amino-prepolímero foram misturados homogeneamente e polimerizados a 37°C por 3 horas.

### Exemplo de Referência

Em um frasco de 250 ml equipado com agitador e condensador 25,000 g (128,70 mmoles) de 3,(4),8,(9)-bis(aminometil)-tríciclo-5.2.1.0<sup>2,6</sup>-decano, 12,755 g (64,35 mmoles) de diacrilato de butanodiol foram homogeneamente misturados e agitados a 20 a 25°C por 3 dias. Depois disso, não foram mais encontradas duplas ligações no espectro IV a 1609 e 809 cm<sup>-1</sup>. Rendimento : 37,764 g (100 % d. Th),  $\eta$  23°C = 7157  $\pm$  100 Pa\*s (após estocagem por 1 mês em temperatura ambiente).

2,127 g (3,624 mmoles) do prepolímero foram homogeneamente misturados com 0,716 g (2,416 mmoles) de triacrilato de trimetilol propano e reagidos a 37°C. A mistura tem um tempo de gel de 30 minutos a 37°C.

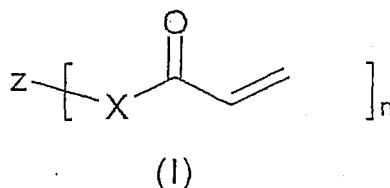
O prepolímero tem uma viscosidade que não é adequada para a aplicação como composição de selagem de canal de raiz. Este exemplo mostra que o produto de reação de dois moles de uma diamina descrita no exemplo de aplicação 1 de WO02/13767 e um mol de um diacrilato provê um prepolímero tendo viscosidade excessiva. No caso do produto de reação de quantidades equimolares de uma diamina e de um diacrilato como descrito no exemplo de aplicação 1 de WO02/13767, a viscosidade do produto polimérico será ainda maior.

## REIVINDICAÇÕES

1. Composição de selagem de canal de raiz dentária curável na ausência de um iniciador de polimerização que compreende

(i) um prepolímero terminado em grupo amina tendo uma viscosidade a 23°C de menos de 100 Pa s, que é obtenível por reação de

(a) um mol de um composto da seguinte fórmula (I)

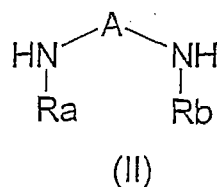


em que

X representa um átomo de nitrogênio ou de oxigênio;

Z representa um grupo hidrocarbônico C<sub>2-16</sub> alifático saturado n-valente ou um grupo hidrocarbônico C<sub>3-6</sub> cicloalifático saturado divalente, os grupos podendo conter 1 a 6 átomos de oxigênio, podendo ser substituídos por 1 a 6 grupos C<sub>1-4</sub> alquila; e n representa um inteiro de 2 a 6; com

(b) pelo menos n moles de um ou mais compostos da fórmula (II)



em que

A representa um grupo hidrocarboneto C<sub>2-16</sub> alifático saturado divalente ou um grupo hidrocarboneto C<sub>3-6</sub> cicloalifático saturado divalente, os grupos podendo conter 1 a 6 átomos de oxigênio e podendo ser substituídos por 1 a 6 grupos C<sub>1-4</sub> alquila;

R<sub>a</sub> e R<sub>b</sub> são iguais ou diferentes e representam

um átomo de hidrogênio, um grupo C<sub>1-6</sub> alquila ou um grupo C<sub>3-14</sub> cicloalquila, que pode ser substituído por um ou mais membros do grupo selecionado de um grupo C<sub>1-4</sub> alquila, um grupo C<sub>1-4</sub> alcóxi, um grupo fenila e um grupo hidróxi;

ou de fórmula (II) em combinação com um ou mais compostos

de fórmula  $\text{RNH}_2$ , em que R representa um grupo  $\text{C}_{1-6}$  alquila ou grupo  $\text{C}_{3-14}$  cicloalquila, que pode ser substituído por um ou mais membros do grupo selecionado entre um grupo  $\text{C}_{1-4}$  alquila, um grupo  $\text{C}_{1-4}$  alcóxi, fenila e um grupo hidróxi, e/ou em combinação com um composto di- ou poliamínico adicional.

5

(ii) um composto acrilato di- ou polifuncional ou um composto maleimida di- ou polifuncional capaz de sofrer poliadição com o prepolímero terminado em grupo amina (i);

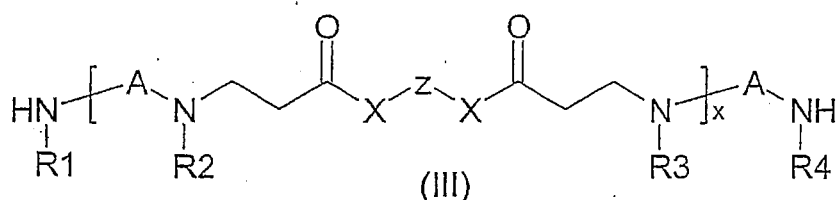
(iii) 40 a 85 % em peso de um agente de enchimento para proporcionar uma radioopacidade mínima de pelo menos 3 mm / mm Al.;

10

a referida composição estando na forma de uma composição de dois componentes em que um primeiro componente contém o prepolímero terminado em amina (i) e opcionalmente agente de enchimento (iii) e um segundo componente contém o composto (ii) capaz de sofrer poliadição com o prepolímero terminado em grupo amina (i) e opcionalmente carga (iii).

15

2. Composição de selagem de canal de raiz dentária de acordo com a reivindicação 1, em que a composição contém um prepolímero da seguinte fórmula (III)



em que

20 A representa um grupo hidrocarbônico  $\text{C}_{2-16}$  alifático saturado divalente ou um grupo hidrocarbônico  $\text{C}_{3-6}$  cicloalifático saturado divalente, os grupos podendo conter 1 a 6 átomos de oxigênio e podendo ser substituídos por 1 a 6 grupos  $\text{C}_{1-4}$  alquila;

X representa um átomo de nitrogênio ou de oxigênio.

25 Z representa um grupo hidrocarbônico  $\text{C}_{2-16}$  alifático saturado divalente ou um grupo hidrocarbônico  $\text{C}_{3-6}$  cicloalifático saturado divalente, os grupos podendo conter 1 a 6 átomos de oxigênio, e podendo ser substituídos por 1 a 6 grupos  $\text{C}_{1-4}$  alquila; e

R1, R2, R3 e R4, que podem ser iguais ou diferentes, representam um átomo de hidrogênio, um grupo C<sub>1-4</sub> alquila ou um grupo C<sub>3-14</sub> cicloalquila, que pode ser substituído por um grupo C<sub>1-4</sub> alquila, um grupo C<sub>1-4</sub> alcóxi, um grupo fenila, ou um grupo hidróxi; e x é um inteiro de 1 a 8;

5 (ii) um composto acrilato di- ou polifuncional ou um composto maleimida di- ou polifuncional capaz de sofrer poliadição com o prepolímero terminado em grupo amina (i);

(iii) 40 a 85 % em peso de um agente de enchimento para prover uma radioopacidade mínima de pelo menos 3 mm/mm Al.

10 3. Composição de selagem de canal de raiz dentária de acordo com a reivindicação 2, em que

A representa uma cadeia hidrocarbônica C<sub>2-10</sub> alifática saturada divalente que pode conter 2 a 4 átomos de oxigênio e que pode ser substituída por 1 a 6 grupos C<sub>1-4</sub> alquila.

15 4. Composição de selagem de canal de raiz dentária de acordo com a reivindicação 1, em que

A representa  $-(\text{CH}_2)_2\text{O}(\text{CH}_2)_2\text{O}(\text{CH}_2)_2-$

20 5. Composição de selagem de canal de raiz dentária de acordo com qualquer uma das reivindicações precedentes em que Z representa uma cadeia hidrocarbônica C<sub>2-10</sub> alifática saturada divalente que pode ser substituída por 1 a 6 grupos C<sub>1-4</sub> alquila.

6. Composição de selagem de canal de raiz dentária de acordo com qualquer uma das reivindicações precedentes, em que Z representa um grupo C<sub>2-6</sub> alquileno.

25 7. Composição de selagem de canal de raiz dentária de acordo com qualquer uma das reivindicações precedentes, em que X representa um átomo de oxigênio.

30 8. Composição de selagem de canal de raiz dentária de acordo com qualquer uma das reivindicações precedentes, em que X representa um átomo de nitrogênio.

9. Composição de selagem de canal de raiz dentária de acordo com qualquer uma das reivindicações precedentes, em que R1, R2, R3 e R4

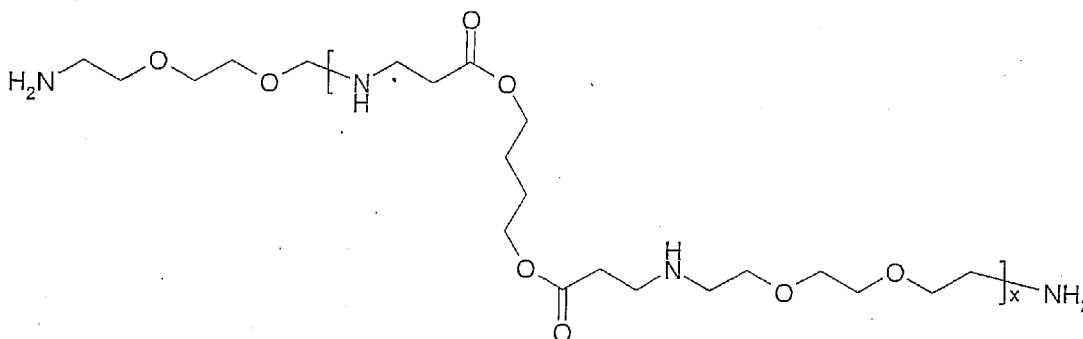
são iguais e preferivelmente um átomo de hidrogênio.

10. Composição de selagem de canal de raiz dentária de acordo com qualquer uma das reivindicações precedentes, em que R1, R2, R3 e R4 são selecionados entre um átomo de hidrogênio, um grupo C<sub>1-4</sub> alquila que pode ser substituído por um grupo fenila, um grupo hidróxi ou um grupo amino.

11. Composição de selagem de canal de raiz dentária de acordo com qualquer uma das reivindicações precedentes, em que o agente de enchimento contém La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, ZrO<sub>2</sub>, BiPO<sub>4</sub>, CaWO<sub>4</sub>, BaWO<sub>4</sub>, SrF<sub>2</sub>, Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

12. Composição de selagem de canal de raiz dentária de acordo com qualquer uma das reivindicações precedentes, em que a composição de dois componentes é um sistema pó/líquido ou um sistema pasta / pasta.

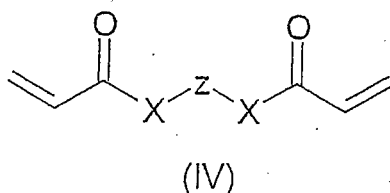
13. Composição de selagem de canal de raiz dentária de acordo com qualquer uma das reivindicações precedentes, contendo um prepolímero da seguinte fórmula:



em que x é como definido acima.

14. Composição de selagem de canal de raiz dentária de acordo com qualquer uma das reivindicações precedentes, em que o prepolímero terminado em amina é obtível por reação de

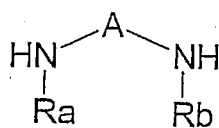
(i) um mol de um composto da seguinte fórmula (IV)



em que X e Z são como definidos na reivindicação 2,

(ii) pelo menos dois moles de um ou mais compostos da seguinte fórmula

(III)



(III)

em que A é como definido na reivindicação 2 e Ra e Rb são iguais ou diferentes e representam um átomo de hidrogênio, um grupo C<sub>1-4</sub> alquila ou um grupo C<sub>3-14</sub> cicloalquila, que podem ser substituídos por um grupo C<sub>1-4</sub> alquila, um grupo fenila ou um grupo hidróxi, e

(iii) opcionalmente um composto amina de fórmula RNH<sub>2</sub>, em que R representa C<sub>1-6</sub> alquila ou um grupo C<sub>3-14</sub> cicloalquila, que pode ser substituído por um ou mais membros do grupo selecionado de um grupo C<sub>1-4</sub> alquila, um grupo C<sub>1-4</sub> alcóxi, um grupo fenila e um grupo hidróxi ou um composto di- ou poliamina.

## RESUMO

Patente de Invenção: "**COMPOSIÇÃO DE SELAGEM DE CANAL DE RAIZ DENTÁRIA**".

5 A presente invenção refere-se a uma composição de selagem de canal de raiz dentária curável por polimerização de adição, na ausência de um catalisador de polimerização. A composição de selagem de canal de raiz dentária da invenção é fornecida na forma de uma composição de dois componentes, em que um primeiro componente contém o prepolímero terminado em amina (i) e opcionalmente agente de enchimento (iii) e um segundo  
10 componente contém o composto (ii) capaz de sofrer poliadição com o prepolímero terminado em grupo amina (i) e opcionalmente agente de enchimento (iii).