ROYAUME DE BELGIQUE

MINISTERE DES AFFAIRES ECONOMIQUES

BREVET D'INVENTION

NUMERO DE PUBLICATION : 1011683A4

NUMERO DE DEPOT : 09700548

Classif. Internat. : A61K C08L

Date de délivrance le : 07 Décembre 1999

Le Ministre des Affaires Economiques,

Vu la Convention de Paris du 20 Mars 1883 pour la Protection de la propriété industrielle;

Vu la loi du 28 Mars 1984 sur les brevets d'invention, notamment l'article 22;

Vu l' arrêté royal du 2 Décembre 1986 relatif à la demande, à la délivrance et au maintien en vigueur des brevets d'invention, notamment l'article 28;

Vu le procès verbal dressé le 26 Juin 1997 à 11H00 à l 'Office de la Propriété Industrielle

ARRETE:

ARTICLE 1.- Il est délivré à : GC CORPORATION
No. 76-1 Hasunuma-cho Itabashi-Ku, TOKYO(JAPON)

représenté(e)(s) par : Mr.MODRIE, NOVAMARK & VIGNERON, Boulevard du Souverain 7 - B 1170 BRUXELLES.

un brevet d' invention d' une durée de 20 ans, sous réserve du paiement des taxes annuelles, pour : COMPOSITION AU SILICONE POUR EMPREINTES DENTAIRES.

INVENTEUR(S) : Kamohara Hiroshi; Hattori Nobuyuki; Komoto Makiko, tous trois: c/o GC Corporation, No. 76-1, Hasunuma-cho, Itabashi-ku, Tokyo (JP)

PRIORITE(S) 03.07.96 JP JPA19164396

ARTICLE 2.- Ce brevet est délivré sans examen préalable de la brevetabilité de l'invention, sans garantie du mérite de l'invention ou de l'exactitude de la description de celle-ci et aux risques et périls du(des) demandeurs(s).

Bruxelles, le 07 Décembre 1999
PAR DELEGATION SPECIALE :

L. WUYTS
CONSEILLER

09700548

TITRE DE L'INVENTION

COMPOSITION AU SILICONE POUR EMPREINTES DENTAIRES

L'invention concerne un biomatériau de moulage utilisé pour la préparation des maquettes de la bouche qui sont indispensables à la préparation de prothèses dentaires en dentisterie, telles que couronnes, inlays et appareils dentaires (le biomatériau de moulage étant appelé dans la suite "matériau d'empreinte") et en particulier une composition au silicone pour empreintes dentaires, à utiliser pour des prises d'empreintes de précision.

ARRIERE-PLAN TECHNOLOGIQUE

Comme biomatériaux d'empreinte dentaires élastiques, on utilise ceux dont la base est constituée par des hydrocolloïdes d'agar-agar, des alginates, des caoutchoucs polysulfures, des caoutchoucs polyéthers, des caoutchoucs au silicone ou similaires. Ces matériaux d'empreinte élastiques conviennent pour la prise d'empreintes de formes compliquées comprenant une zone en contre-dépouille dans la cavité buccale, telles que racines dentaires, dents, mâchoires et membranes muqueuses, car la déformation engendrée lors du retrait de l'empreinte hors de la cavité buccale est rapidement suivie d'une reprise de forme.

Parmi ces matériaux d'empreinte élastiques, les matériaux d'empreinte aux hydrocolloïdes d'agar-agar et ceux aux alginates ont, cliniquement parlant, une élasticité adéquate. D'autre part, néanmoins, ces matériaux élastiques souffrent d'une importante déformation permanente qui tient à la forte teneur en eau de leur structure, et ils ont par conséquent des propriétés qui font que la teneur en eau s'évapore de l'empreinte prise, ce qui se traduit par d'importantes variations des dimensions après un certain laps de temps. En outre, comme ces matériaux élastiques présentent des inconvénients tels qu'une propension à la déchirure tenant à leur faible résistance à la déchirure, ils sont utilisés principalement pour la prise d'empreintes préliminaires.

D'un autre côté, les matériaux d'empreinte élastiques à base de caoutchouc synthétique, dont la base est

constituée par les caoutchoucs polysulfures, les caoutchoucs polyéthers, les caoutchoucs siliconés ou similaires, ont pour avantages le fait que la reproductibilité des détails est supérieure, que les variations dimensionnelles sont extrêmement réduites et qu'ils se déchirent difficilement. Pour ces raisons, ces matériaux d'empreinte élastiques à base de caoutchoucs synthétiques sont utilisés, surtout, pour la prise d'empreintes de précision. Cependant, les matériaux d'empreinte à base de polysulfure, dont la base est constituée par des caoutchoucs polysulfures, ont pour inconvénients une forte odeur déplaisante et une prise lente. Par ailleurs, les matériaux d'empreinte à base de caoutchoucs polyéthers ont des propriétés hydrophiles supérieures et conviennent pour la prise d'empreintes en présence de salive, comme c'est le cas dans la cavité buccale. Cependant, les matériaux d'empreinte à base de caoutchoucs polyéthers ont pour inconvénient que le retrait de l'empreinte hors de la cavité buccale d'un patient pose problème, parce que l'élasticité du caoutchouc est faible et que le matériau solidifié est dur. En outre, comme les caoutchoucs polyéthers ont un goût amer qui leur est inhérent, les matériaux d'empreinte à base de caoutchouc polyéther ont pour inconvénient qu'ils donnent une sensation déplaisante à un patient. De plus, comme les matériaux d'empreinte à base de caoutchouc polyéther souffrent d'une importante déformation permanente, le risque est que la déformation se produise au moment où l'on retire l'empreinte de la cavité buccale.

Par contraste, les matériaux d'empreinte dont la base consiste en des caoutchoucs siliconés comprennent un type à polymérisation par condensation, et un type à polymérisation par addition, en fonction de leur processus de solidification. Tous ces caoutchoucs au silicone vulcanisant à froid sont utilisés comme matériaux au silicone pour empreintes dentaires. Parmi ces matériaux, les matériaux au silicone pour empreintes du type à polymérisation par addition solidifient rapidement, et ne présentent que peu de déformations permanentes et des variations dimensionnelles extrêmement réduites, de sorte qu'ils sont tout à fait appropriés pour être utilisés comme empreintes de précision. Or, comparés aux matériaux d'empreinte aux alginates, les matériaux d'empreinte à base de caoutchouc siliconé sont tellement durs après leur prise, que

lorsque l'empreinte est retirée de la cavité buccale d'un patient, elle provoque une douleur chez celui-ci et si une maquette de plâtre est préparée en utilisant l'empreinte ainsi prise, puis séparée de l'empreinte, il peut arriver quelquefois que le plâtre se brise, en fonction du site. De même, par comparaison aux matériaux d'empreinte à base de caoutchouc polyéther, les matériaux d'empreinte au caoutchouc siliconé ont de moins bonnes propriétés hydrophiles, qui font que la prise d'empreinte des détails peut manquer de netteté en raison de la présence de salive dans la cavité buccale. Qui plus est, comme la résistance au déchirement n'est pas suffisamment élevée, si on retire l'empreinte de la cavité buccale d'un patient, le matériau d'empreinte peut se déchirer en fonction du site d'empreinte, ce qui fait que l'empreinte est incomplète.

A la lumière de ce qui précède, on remarquera que bien que les matériaux d'empreinte utilisés actuellement ont des avantages inhérents, ils impliquent également plusieurs inconvénients. Tous ces matériaux d'empreinte se sont avérés imparfaits comme matériaux d'empreinte pour reproduire dans les détails la situation existant dans la cavité buccale, et pour préparer des prothèses dentaires avec une bonne précision d'ajustement, sans occasionner de douleurs chez le patient.

Parmi les matériaux d'empreinte décrits plus haut, les inventeurs ont accordé une attention particulière aux matériaux d'empreinte au silicone du type polymérisant par addition, qui non seulement ne subissent que des variations dimensionnelles et des déformations permanentes réduites, mais qui se prêtent également mieux à une prise d'empreinte précise. Ainsi, l'invention a pour but de mettre au point une composition au silicone pour empreintes dentaires qui bénéficie d'excellentes propriétés en vue de la prise d'empreintes de précision, en remédiant aux déficiences du silicone du type à polymérisation par addition qui font que la dureté, après la prise, est tellement élevée que la déformation en compression est faible, que la mouillabilité à la teneur en eau telle que la salive est médiocre, et que la résistance à la déchirure est insuffisante, tout en rehaussant ses propriétés supérieures.

RESUME DE L'INVENTION

Les inventeurs ont mené des recherches poussées

afin d'atteindre le but de l'invention décrit plus haut, avec pour résultat qu'ils ont réussi à obtenir une composition au silicone pour empreintes dentaires qui tolère une déformation en compression élevée, qui ne subit qu'une faible déformation permanente et présente une élasticité élevée, ne génère ni coulures ni ne se déchire lors de la prise d'empreinte, et dont la mouillabilité à l'eau est supérieure, en ajoutant des quantités spécifiques d'une fine poudre de silice particulière, un agent de surface non-ionique et un méthylphénylpolysiloxane à un matériau d'empreinte au silicone du type polymérisant par addition comprenant un organopolysiloxane possédant au moins deux hydrocarbures aliphatiques insaturés dans une molécule, un organohydrogénopolysiloxane possédant au moins trois atomes d'hydrogène liés directement à l'atome de silicium dans une molécule, un composé de platine soluble dans le silicone, et une charge minérale, aboutissant ainsi à la réalisation de l'invention.

En d'autres termes, la composition au silicone pour empreintes dentaires conforme à l'invention comprend les composants (A) à (G) suivants :

(A) 100 parties en poids d'un organopolysiloxane possédant au moins deux hydrocarbures aliphatiques insaturés dans une molécule;

(B) 0,1 à 30 parties en poids d'un organohydrogénopolysiloxane renfermant au moins trois atomes d'hydrogène liés directement à l'atome de silicium dans une molécule;

(C) 10 à 500 ppm, en fonction de la quantité totale des composants (A) et (B), d'un composé de platine soluble dans le silicone;

(D) 10 à 500 parties en poids d'une charge minérale;

(E) 5 à 50 parties en poids d'une fine poudre de silice présentant une surface spécifique BET de 50 à 500 m^2/g, dont la surface a été traitée pour être hydrophobe;

(F) 0,5 à 50 parties en poids d'un agent de surface non-ionique; et

(G) 10 à 200 parties en poids d'un méthylphényl-polysiloxane.

DESCRIPTION DETAILLEE DE L'INVENTION

Dans la composition au silicone pour empreintes dentaires comprenant les composants (A) à (G) en accord avec l'invention, le composant (A) est un organopolysiloxane renfermant au moins deux hydrocarbures aliphatiques insaturés dans une molécule. A titre d'organopolysiloxane, on préfère ceux qui sont linéaires et

terminés par des groupements vinylsilyle aux deux extrémités de leur chaîne moléculaire. Dans ce cas, le groupement vinyle terminal peut être en nombre pluriel, et le groupement vinyle être contenu dans la chaîne.

L'organohydrogénopolysiloxane en tant que composant (B) possède au moins trois atomes d'hydrogène liés directement à l'atome de silicium dans une molécule, et se comporte en agent de réticulation. Si la quantité ajoutée d'organohydrogénopolysiloxane est inférieure à 0,1 partie en poids, sur une base de 100 parties en poids de composant (A), non seulement la dureté du matériau solidifié diminue, mais encore, la vitesse de prise est basse; et si la quantité ajoutée d'organohydrogénopolysiloxane est supérieure à 30 parties en poids, sur une base de 100 parties en poids de composant (A), le matériau solidifié est très cassant. En conséquence, on préfère éviter ces deux cas.

Le composé de platine soluble dans le silicone en guise de composant (C) fait office de catalyseur de réaction d'addition, et on peut employer le chloroplatinate déjà connu, les chloroplatinates modifiés à l'alcool et des complexes de chloroplatinate avec des oléfines. L'emploi d'un complexe chloroplatinate-vinylsiloxane, en particulier, est commode. La quantité ajoutée de composé de platine soluble dans le silicone se situe dans l'intervalle de 10 à 500 ppm, en fonction de la quantité totale des composants (A) et (B). Si la quantité ajoutée de composant (C) est inférieure à 10 ppm, la vitesse de prise est basse, et si des substances inhibant l'activité catalytique du composé de platine sont présentes à l'état de traces, le problème est que la prise est ralentie. Par ailleurs, si l'addition de composant (C) est supérieure à 500 ppm, la vitesse de prise est trop élevée et le coût de production est élevé, ce qui entraîne des désavantages économiques. De préférence, le composé de platine soluble dans le silicone, comme le chloroplatinate, est utilisé une fois dissous dans des solvants à base d'alcool, de cétone, d'éther ou d'hydrocarbures, ou dans des huiles de polysiloxanes.

Comme charge minérale représentant le composant (D), on peut utiliser du quartz, de la cristobalite, de la terre de diatomées, du quartz fusé, des fibres de verre, du dioxyde de

titane et de la silice fumée. La quantité de charges minérales ajoutée va de 10 à 500 parties en poids, sur une base de 100 parties en poids de composant (A). Si la quantité ajoutée de composant (D) est inférieure à 10 parties en poids, le matériau solidifié est cassant; et si la quantité de composant (D) ajoutée est supérieure à 500 parties en poids, la viscosité est tellement élevée que la résistance est excessivement forte au moment du pétrissage, ce qui fait que le matériau résultant ne convient plus comme matériau d'empreinte dentaire.

La fine poudre de silice utilisée comme composant (E) présente une surface spécifique BET de l'ordre de 50 à 500 m^2/g, et sa surface est traitée pour être hydrophobe. Cette fine poudre de silice hydrophobe est obtenue, en substance, par le traitement thermique de silice fumée, par exemple, en tant que silice hydrophile, avec un agent de traitement de surface tel que le méthyl trichloro silane, le diméthyl dichloro silane, le triméthyl chloro silane, les alcoxysilanes correspondants, l'octaméthyl cyclo tétrasiloxane, l'hexaméthyl disiloxane, l'hexaméthyl disilazane et leurs mélanges, ou avec un mélange de tels agents de traitement de surface et d'eau. On peut utiliser de la silice hydrophobe connue, dans laquelle tous les groupements silanols, ou leur majeure partie, présents à la surface, sont terminés par un groupement hydrophobe tel qu'un motif (CH3)3 SiO1/2, un motif (CH3)2SiO2/2 et un motif CH3SiO3/2. La fine poudre de silice hydrophobe est non seulement apte à faire en sorte que le mélange de matériau d'empreinte pétri bénéficie des caractéristiques de fluidité voulues sans accroître la dureté du matériau solidifié, mais elle sert également à améliorer la mouillabilité à l'eau par le jeu d'une interaction mutuelle avec les composants (F) et (G), comme nous l'expliquerons ultérieurement. Par ailleurs, la résistance à la déchirure étant améliorée, il n'y a pas lieu de craindre que le matériau d'empreinte introduit dans le détail à reproduire se déchire au moment où l'on retire l'empreinte. La fine poudre de silice hydrophobe doit avoir une surface spécifique BET de l'ordre de 50 à 500 m^2/g. Si la surface spécifique BET est inférieure à 50 m^2/g, la résistance à la déchirure n'est pas suffisante, ce qui fait que le matériau d'empreinte se déchire, tandis que si la surface spécifique BET est supérieure à 500 m^2/g, la déformation permanente est trop

importante, ce que l'on veut éviter. En outre, la quantité de fine poudre de silice hydrophobe apportée dans le mélange est de 5 à 50 parties en poids, sur une base de 100 parties en poids de composant (A). Si la quantité de composant (E) apportée dans le mélange est inférieure à 5 parties en poids, non seulement la résistance à la déchirure est insuffisante, mais il est encore probable qu'il se produira un suintement d'huile de polysiloxane. D'un autre côté, si la quantité de composant (E) apportée dans le mélange dépasse 500 parties en poids, la viscosité de la composition est trop élevée, ce qui fait que l'opération de pétrissage est compliquée.

Des exemples ad hoc d'agents de surface non ioniques en guise de composant (E) comprennent des agents de surface non-ioniques renfermant une combinaison d'un groupe hydrophile avec un groupe alcoyle en tant que groupe lipophile, ou des agents de surface non-ioniques renfermant une combinaison d'un groupe hydrophile avec un groupe fluorocarbone dans laquelle des atomes d'hydrogène présents dans un groupe alcoyle en tant que groupe hydrophile sont remplacés par des atomes de fluor.

Les agents de surface non-ioniques renfermant une combinaison d'un groupe hydrophile avec un groupe alcoyle en tant que groupe lipophile comprennent :

(1) des types éther tels que les alkyléthers de polyoxyéthylène, les alkyléthers de polyoxypropylène, et les alkylphényléthers de polyoxyéthylène, dans lesquels le nombre de moles d'addition d'oxyde d'éthylène ou d'oxyde de propylène est de 1 à 30, et le nombre d'atomes de carbone du groupe alcoyle est de 12 à 22.

(2) types d'esters partiels entre un polyol et un acide gras renfermant 12 à 22 atomes de carbone, tels que les esters d'acide gras de sorbitan, les esters d'acide gras de glycérol, les esters d'acide gras de polyglycérol, les esters d'acide gras d'éthylèneglycol, les esters d'acide gras de polyéthylèneglycol, les esters d'acide gras de propylèneglycol et les esters d'acide gras de pentaérythritol;

(3) types éther-ester tels que les esters d'acide gras de polyoxyéthylène sorbitan, les esters d'acide gras de polyoxyéthylène sorbitol, les esters d'acide gras de polyoxyéthylène mannitol, les esters d'acide gras de polyoxyéthylène glycérol et les esters d'acide gras monomères de polyoxyéthylène propylèneglycol, dans lesquels le

nombre de moles d'addition d'oxyde d'éthylène est de 1 à 30, et le nombre d'atomes de carbone de l'acide gras est de 12 à 22; et

(4) types d'esters possédant 1 à 30 moles d'oxyde d'éthylène polymérisé par addition, tels que polyoxyéthylène-huile de ricin/huile de ricin durcie, les dérivés polyoxyéthylène-lanoline et les dérivés polyoxyéthylène-cire d'abeilles.

Des exemples d'agents de surface non-ioniques renfermant une combinaison d'un groupe hydrophile avec un groupe fluorocarbone dans laquelle des atomes d'hydrogène présents au sein d'un groupe alcoyle en tant que groupe lipophile sont remplacés par des atomes de fluor comprennent ceux représentés par les formules suivantes:

$$Rf\text{-}O(CnH2nO)nH$$

$$RfO(CH2n)IO(CnH2nO)m$$

$$RfBN(R')(C2H4O)nH$$

où Rf représente un groupe aliphatique fluoré ou un groupe aromatique fluoré renfermant chacun 1 à 20 atomes de carbone, pourvu que le groupe aliphatique puisse être linéaire, ramifié ou cyclique; B représente un groupe de liaison bivalent (p.ex., -SO2-, -CO); R' représente un atome d'hydrogène ou un groupe alcoyle renfermant 1 à 20 atomes de carbone; et l, m et n représentent tous un nombre entier de 1 à 50.

L'agent de surface non-ionique utilisé dans l'invention a un comportement efficace permettant une amélioration de la mouillabilité à l'eau en la présence simultanée des composants (E) et (G). La teneur en agent de surface non-ionique doit se situer dans l'intervalle de 0,5 à 50 parties en poids, sur une base de 100 parties en poids de composant (A). Si la teneur en composant (F) est inférieure à 0,5 partie en poids, la mouillabilité à l'eau est insuffisante, tandis que si la teneur en composant (F) est supérieure à 50 parties en poids, la déformation permanente est importante. Ces agents de surface non-ioniques peuvent être utilisés seuls ou en mélange de deux ou plusieurs.

En guise de méthylphényl-polysiloxane mis en oeuvre comme composant (G), on peut utiliser ceux qui sont représentés par la formule suivante :

Dans cette formule, R représente un groupe méthyle ou un groupe phényle; et m et n représentent chacun un nombre entier $m \geq 0$, $n \geq 0$.

En tant que composant (G), le méthylphényl-polysiloxane est efficace pour que le matériau solidifié soit souple sans changer la déformation permanente et pour rehausser la déformation en compression. Par ailleurs, le méthylphényl-polysiloxane améliore la mouillabilité à l'eau en la présence simultanée des composants (E) et (F). La teneur en méthylphényl-polysiloxane doit se situer dans l'intervalle de 10 à 200 parties en poids, sur une base de 100 parties en poids du composant (A). Si la teneur en composant (G) est inférieure à 10 parties en poids, l'élasticité est insuffisante, tandis que si la teneur en composant (G) est supérieure à 200 parties en poids, un suintement indésirable se manifestera à la surface du matériau solidifié.

De plus, selon l'invention, et pour autant que les caractéristiques de la composition ne soient pas perdues, on peut utiliser plusieurs types de colorants minéraux ou organiques. Des exemples de colorants susceptibles d'emploi comprennent ceux utilisés pour les matériaux d'empreinte au silicone classiques, comme l'oxyde rouge, le blanc de titane, le jaune de titane et le bleu de cobalt.

L'invention sera décrite de manière plus détaillée par référence aux exemples qui vont suivre, mais il ne faut pas en conclure que l'invention y est limitée.

EXEMPLE 1

On a préparé une pâte de base et une pâte catalysante ayant chacune les compositions suivantes.

(Pâte de base)	
Diméthylpolysiloxane terminé par des groupes diméthylvinylsiloxy aux deux extrémités de la chaîne moléculaire	100 parties en poids
Méthylhydrogénopolysiloxane linéaire contenant	

40 % mol. d'un motif méthylhydrogénopolysiloxane : 3 parties en poids

Polyoxyéthylène nonylphényléther : 10 parties en poids

Quartz : 20 parties en poids

(Pâte catalysante)

Diméthylpolysiloxane terminé par des groupes diméthylvinylsiloxy aux deux extrémités de la chaîne moléculaire : 100 parties en poids

Solution d'huile de silicone contenant 0,4 % en poids d'un complexe 1,3-divinyltétraméthyldisiloxane-platine : 3 parties en poids

Fine poudre de silice hydrophobe présentant une surface spécifique BET de 100 m^2/g, dont la surface est terminée par un motif $(CH3)3SiO1/2$: 10 parties en poids

Méthylphénylpolysiloxane (teneur du groupe phényle : 5 % mol.) : 20 parties en poids

On a pris des quantités égales de pâte de base et de pâte catalysante, et on les a pétries pendant 30 secondes à la spatule, et on a mesuré la déformation en compression et la déformation permanente du mélange pétri conformément au processus de test défini dans la JIS (Japaneese Industrial Standard) T6513. Plus la déformation en compression était élevée, plus le matériau solidifié était souple. Par ailleurs, plus la valeur de déformation permanente était basse, plus la prise était rapide et moins la déformation était importante. Le test de la déchirure a été exécuté sur la base d'un test de déchirure spécimen A-model dans le processus de test tel que défini dans JIS K6301, après pétrissage des deux pâtes. En ce qui concerne la mouillabilité à l'eau, après pétrissage des deux pâtes, on a préparé un échantillon discoïde d'un diamètre de 30 mm et d'une épaisseur de 1 mm, et on a mesuré un angle de contact avec l'eau au moyen d'un mesureur d'angle de contact. Les résultats obtenus sont résumés dans le Tableau 1.

Comme le montre le Tableau 1, en ce qui concerne la composition de l'Exemple 1, bien que la déformation en compression était importante, la déformation permanente était assez faible, la composition prenait rapidement et le matériau solidifié était souple et présentait peu de déformation. Par ailleurs, la résistance à la

déchirure était tellement élevée qu'il s'est vérifié que le matériau solidifié se déchirait difficilement. De plus, l'angle de contact avec l'eau était si petit que le matériau durci bénéficiait d'une mouillabilité supérieure à l'eau.

EXEMPLE 2

On a préparé une pâte de base et une pâte catalysante ayant chacune les compositions suivantes.

(Pâte de base)

Diméthylpolysiloxane terminé par des groupes diméthylvinylsiloxy aux deux extrémités de la chaîne moléculaire — 100 parties en poids

Méthylhydrogénopolysiloxane linéaire contenant 40 % mol. d'un motif méthylhydrogénopolysiloxane : 3 parties en poids

Polyoxyéthylène lauryléther : 1 partie en poids

Quartz : 800 parties en poids

(Pâte catalysante)

Diméthylpolysiloxane terminé par des groupes diméthylvinylsiloxy aux deux extrémités de la chaîne moléculaire : 100 parties en poids

Solution d'huile de silicone contenant 0,4 % en poids d'un complexe 1,3-divinyltétraméthyldisiloxane-platine : 3 parties en poids

Fine poudre de silice hydrophobe présentant une surface spécifique BET de 100 m^2/g, dont la surface est terminée par un motif (CH3)3SiO1/2 — 20 parties en poids

Méthylphénylpolysiloxane (teneur du groupe phényle : 25 % mol.): 400 parties en poids

Quartz : 200 parties en poids

On a pris des quantités égales de pâte de base et de pâte catalysante, et on les a pétries pendant 30 secondes à la spatule, et on a effectué les mêmes tests qu'à l'Exemple 1. Les résultats obtenus sont résumés dans le Tableau 1.

Comme le montre le Tableau 1, en ce qui concerne la composition de l'Exemple 2, bien que la déformation en compression était importante, la déformation permanente était assez réduite, la composition prenait rapidement et le matériau solidifié était

souple et présentait peu de déformation. Par ailleurs, la résistance à la déchirure était tellement élevée qu'il s'est vérifié que le matériau solidifié se déchirait difficilement. De plus, l'angle de contact avec l'eau était si petit que le matériau durci bénéficiait d'une mouillabilité supérieure à l'eau.

EXEMPLE 3

On a préparé une pâte de base et une pâte catalysante ayant chacune les compositions suivantes.

(Pâte de base)

Diméthylpolysiloxane terminé par des groupes diméthylvinylsiloxy aux deux extrémités de la chaîne moléculaire 100 parties en poids

Méthylhydrogénopolysiloxane linéaire contenant 40 % mol. d'un motif méthylhydrogénopolysiloxane : 3 parties en poids

Polyoxyéthylène octylphényléther : 100 parties en poids

Cristobalite : 100 parties en poids

(Pâte catalysante)

Diméthylpolysiloxane terminé par des groupes diméthylvinylsiloxy aux deux extrémités de la chaîne moléculaire : 100 parties en poids

Solution d'huile de silicone contenant 0,4 % en poids d'un complexe 1,3-divinyltétraméthyldisiloxane-platine : 3 parties en poids

Fine poudre de silice hydrophobe présentant une surface spécifique BET de 100 m²/g, dont la surface est terminée par un motif (CH3)3SiO1/2 100 parties en poids

Méthylphénylpolysiloxane (teneur du groupe phényle : 50 % mol.): 150 parties en poids

On a pris des quantités égales de pâte de base et de pâte catalysante, et on les a pétries pendant 30 secondes à la spatule, et on a effectué les mêmes tests qu'à l'Exemple 1. Les résultats obtenus sont résumés dans le Tableau 1.

Comme le montre le Tableau 1, en ce qui concerne la composition de l'Exemple 3, bien que la déformation en compression était importante, la déformation permanente était assez faible, la composition prenait rapidement et le matériau solidifié était

souple et présentait peu de déformation. Par ailleurs, la résistance à la déchirure était tellement élevée qu'il s'est confirmé que le matériau solidifié se déchirait difficilement. De plus, l'angle de contact avec l'eau était si petit que le matériau solidifié bénéficiait d'une mouillabilité supérieure à l'eau.

EXEMPLE COMPARATIF 1

On a préparé une pâte de base et une pâte catalysante comprenant, chacune, la composition qui suit, mais ne contenant pas le composant (E) comme dans l'invention.

(Pâte de base)

Diméthylpolysiloxane terminé par des groupes diméthylvinylsiloxy aux deux extrémités de la chaîne moléculaire — 100 parties en poids

Méthylhydrogénopolysiloxane linéaire contenant 40 % mol. d'un motif méthylhydrogénopolysiloxane : 3 parties en poids

Polyoxyéthylène nonylphényléther : 10 parties en poids

Quartz : 50 parties en poids

(Pâte catalysante)

Diméthylpolysiloxane terminé par des groupes diméthylvinylsiloxy aux deux extrémités de la chaîne moléculaire : 100 parties en poids

Solution d'huile de silicone contenant 0,4 % en poids d'un complexe 1,3-divinyltétraméthyldisiloxane-platine : 3 parties en poids

Méthylphénylpolysiloxane (teneur du groupe phényle : 25 % mol.): 100 parties en poids

Quartz : 100 parties en poids

On a pris des quantités égales de pâte de base et de pâte catalysante, et on les a pétries pendant 30 secondes à la spatule, et on a mené les mêmes tests qu'à l'Exemple 1. Les résultats obtenus sont résumés dans le Tableau 1.

Comme le montre le Tableau 1, en ce qui concerne la composition de l'Exemple comparatif 1, bien que la déformation permanente soit peu importante, la déformation en compression tolérée était peu importante et le matériau solidifié était dur. Par ailleurs, la résistance à la déchirure était tellement basse qu'il s'est confirmé que le matériau solidifié se déchirait facilement.

EXEMPLE COMPARATIF 2

On a préparé une pâte de base et une pâte catalysante ayant, chacune, la composition qui suit, mais ne contenant pas le composant (G), comme dans l'invention.

(Pâte de base)

Diméthyl polysiloxane terminé par des groupes diméthylvinylsiloxy aux deux extrémités de la chaîne moléculaire — 100 parties en poids

Méthylhydrogénopolysiloxane linéaire contenant 40 % mol. d'un motif méthylhydrogénopolysiloxane : — 3 parties en poids

Polyoxyéthylène nonylphényléther : — 10 parties en poids

Quartz : — 50 parties en poids

(Pâte catalysante)

Diméthylpolysiloxane terminé par des groupes diméthylvinylsiloxy aux deux extrémités de la chaîne moléculaire : — 100 parties en poids

Solution d'huile de silicone contenant 0,4 % en poids d'un complexe 1,3-divinyltétraméthyldisiloxane-platine : — 3 parties en poids

Fine poudre de silice hydrophobe présentant une surface spécifique BET de 100 m^2/g, dont la surface est terminée par un motif $(CH3)2SiO2/2$ — 50 parties en poids

On a pris des quantités égales de pâte de base et de pâte catalysante, et on les a pétries pendant 30 secondes à la spatule, et on a effectué les mêmes tests qu'à l'Exemple 1. Les résultats obtenus sont résumés dans le Tableau 1.

Comme le montre le Tableau 1, en ce qui concerne la composition de l'Exemple comparatif 2, bien que la déformation permanente ait été peu importante, la déformation en compression tolérée était faible et le matériau solidifié était dur. De même, l'angle de contact avec l'eau était plus grand qu'avec les compositions des Exemples 1 à 3, et partant, il a été confirmé que la mouillabilité à l'eau était moins bonne.

TABLEAU 1

	Exemple 1	Exemple 2	Exemple 3	Exemple comparatif 1	Exemple comparatif 2
Déformation en compression (%)	19,65	10,3	16,2	5,5	5,2
Déformation permanente (%)	0,3	0,3	0,3	0,3	0,3
Résistance à la déchirure (N/m)	8,9	8,2	9,5	4,5	8,1
Angle de contact (°)	35	40	28	56	60

Comme nous l'avons décrit de manière détaillée plus haut, bien que la composition au silicone pour empreintes dentaires conforme à l'invention offre une résistance élevée à la compression, il présente une déformation permanente peu importante et même après sa prise, il est toujours souple. Ainsi donc, à l'enlèvement de l'empreinte de la cavité buccale d'un patient, elle se retire aisément, sans faire mal au patient. Par ailleurs, lorsque l'empreinte est retirée, il n'y a pas lieu de craindre une déformation ni un déchirement. En outre, lorsqu'on verse un matériau de maquette, comme du plâtre, dans l'empreinte obtenue, et qu'on retire ensuite le

un déchirement. En outre, lorsqu'on verse un matériau de maquette, comme du plâtre, dans l'empreinte obtenue, et qu'on retire ensuite le matériau de maquette, la composition de l'invention a pour effet de permettre l'enlèvement aisé du matériau de maquette.

Qui plus est, le matériau au silicone pour empreintes dentaires conforme à l'invention est à ce point supérieur en termes de mouillabilité à l'eau qu'il permet de prendre une empreinte précieuse d'un détail de la cavité buccale. Ainsi, la composition de l'invention permet une prise sûre et infaillible d'empreintes compliquées.

A la lumière de ce qui précède, avec la composition au silicone pour empreintes dentaires de l'invention, on a réussi à mettre au point des matériaux d'empreinte dentaires bénéficiant de propriétés supérieures leur permettant de surmonter les défauts des matériaux d'empreinte dentaires utilisés classiquement. L'invention est par conséquent fort utile pour les dentistes, patients et techniciens dentaires, et apporte une contribution extrêmement précieuse au domaine dentaire.

Bien que l'invention ait été décrite de manière détaillée et par référence à des réalisations spécifiques, il sera évident pour l'homme de métier que l'on pourra y apporter divers changements et modifications sans s'écarter de son esprit et de sa portée.

REVENDICATION

1. Composition au silicone pour empreintes dentaires, comprenant :

(A) 100 parties en poids d'un organopolysiloxane possédant au moins deux hydrocarbures aliphatiques insaturés dans une molécule;

(B) 0,1 à 30 parties en poids d'un organohydrogénopolysiloxane renfermant au moins trois atomes d'hydrogène liés directement à l'atome de silicium dans une molécule;

(C) 10 à 500 ppm, en fonction de la quantité totale des composants (A) et (B), d'un composé de platine soluble dans le silicone;

(D) 10 à 500 parties en poids d'une charge minérale;

(E) 5 à 50 parties en poids d'une fine poudre de silice présentant une surface spécifique BET de 50 à 500 m^2/g, dont la surface a été traitée pour être hydrophobe;

(F) 0,5 à 50 parties en poids d'un agent de surface non-ionique; et

(G) 10 à 200 parties en poids d'un méthylphényl-polysiloxane.

Numero de la demande nationale

Office européen des brevets

RAPPORT DE RECHERCHE

établi en vertu de l'article 21 § 1 et 2 de la loi belge sur les brevets d'invention du 28 mars 1984

BO 6651
BE 9700548

DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS

Catégorie	Citation du document avec indication, en cas de besoin, des parties pertinentes	Revendication concernée	CLASSEMENT DE LA DEMANDE (Int.Cl.6)
A	EP 0 398 745 A (SHINETSU CHEMICAL CO) 22 novembre 1990 * le document en entier *	1	A61K6/10
A	EP 0 158 141 A (WACKER CHEMIE GMBH) 16 octobre 1985		
A	EP 0 480 238 A (BAYER AG) 15 avril 1992		
A	EP 0 268 347 A (KERR MFG CO) 25 mai 1988		

DOMAINES TECHNIQUES RECHERCHES (Int.Cl.6)
A61K

1

Date d'achèvement de la recherche	Examinateur
24 février 1999	Cousins-Van Steen, G

CATEGORIE DES DOCUMENTS CITES

X : particulièrement pertinent à lui seul
Y : particulièrement pertinent en combinaison avec un autre document de la même catégorie
A : arrière-plan technologique
O : divulgation non-écrite
P : document intercalaire

T : théorie ou principe à la base de l'invention
E : document de brevet antérieur, mais publié à la date de dépôt ou après cette date
D : cité dans la demande
L : cité pour d'autres raisons

& : membre de la même famille, document correspondant

EPO FORM 1503 03.82 (P04C48)

ANNEXE AU RAPPORT DE RECHERCHE RELATIF A LA DEMANDE DE BREVET BELGE NO.

BO 6651
BE 9700548

La présente annexe indique les membres de la famille de brevets relatifs aux documents brevets cités dans le rapport de recherche visé ci-dessus.
Lesdits membres sont contenus au fichier informatique de l'Office européen des brevets à la date du
Les renseignements fournis sont donnés à titre indicatif et n'engagent pas la responsabilité de l'Office européen des brevets.

24-02-1999

Document brevet cité au rapport de recherche	Date de publication	Membre(s) de la famille de brevet(s)	Date de publication
EP 0398745 A	22-11-1990	JP 1827494 C	28-02-1994
		JP 2305857 A	19-12-1990
		JP 5036458 B	31-05-1993
		JP 1827495 C	28-02-1994
		JP 2305858 A	19-12-1990
		JP 5036459 B	31-05-1993
		DE 69028346 D	10-10-1996
		DE 69028346 T	27-02-1997
		US 5064891 A	12-11-1991
EP 0158141 A	16-10-1985	DE 3409139 A	19-09-1985
		CA 1277794 A	11-12-1990
		JP 60208903 A	21-10-1985
		US 4600731 A	15-07-1986
EP 0480238 A	15-04-1992	DE 4031759 A	09-04-1992
		AT 108643 T	15-08-1994
		DE 59102244 D	25-08-1994
		DK 480238 T	17-10-1994
		ES 2056547 T	01-10-1994
		IE 64694 B	23-08-1995
		JP 4272960 A	29-09-1992
		PT 99157 A	30-09-1992
EP 0268347 A	25-05-1988	US 4782101 A	01-11-1988
		US 4806575 A	21-02-1989
		AU 605766 B	24-01-1991
		AU 7320387 A	09-06-1988
		CA 1294946 A	28-01-1992
		DE 3780576 A	27-08-1992
		DE 3780576 T	05-06-1997
		JP 63130510 A	02-06-1988

EPO FORM P0463