
Octrooiraad



⑩ A Terinzagelegging ⑪ 7907202

Nederland

⑲ NL

⑤4 Stralingsondoorlaatbare tandherstelpreparaten.

⑤1 Int.Cl³: A61K6/08, A61K49/04.

⑦1 Aanvrager: Colgate-Palmolive Company te New York.

**⑦4 Gem.: Ir. H.M. Urbanus c.s.
Vereenigde Octrooibureaux
Nieuwe Parklaan 107
2587 BP 's-Gravenhage.**

②1 Aanvraag Nr. 7907202.

②2 Ingediend 27 september 1979.

③2 --

③3 --

③1 --

②3 --

⑥1 --

⑥2 --

④3 Ter inzage gelegd 31 maart 1981.

De aan dit blad gehechte stukken zijn een afdruk van de oorspronkelijk ingediende beschrijving met conclusie(s) en eventuele tekening(en).

Titel: Stralingsondoorlaatbare tandherstelpreparaten.

De uitvinding heeft betrekking op voor röntgenstralen ondoorlaatbare vulpreparaten en meer in het bijzonder op tandherstelpreparaten onder toepassing van dergelijke voor röntgenstralen ondoorlaatbare vulpreparaten.

5 Deeltjesvormige versterkte polymeermatrixpreparaten worden op ruime schaal toegepast voor tandherstelwerkzaamheden, in het bijzonder vullingen en insnijrandherstellingen, inlegsels en dergelijke. De anorganische vulstoffase was typisch een kiezelzuurhoudend materiaal, zoals silica, kwarts, hoogsmeltende zouten, glas
10 of keramisch materiaal. Ofschoon deze versterkte polymere materialen vaak bevredigende resultaten verschaffen ten aanzien van sterkte, kleuring, niet-giftigheid en thermische uitzettingscoëfficiënt, lijden zij aan het nadeel, dat zij met röntgenstraalanalyse, zoals toegepast in de tanddiagnostiek, moeilijk zijn te onderscheiden.

15 Dientengevolge zijn er vele pogingen gedaan om voor straling ondoorlaatbare tandpreparaten te verschaffen, waarin een bariumbevattend glas wordt gebruikt voor het vervangen van een deel of al de kiezelzuurhoudende vulstof, bij voorbeeld in de Amerikaanse octrooischriften 3.808.170, 3.801.344, 3.826.778, 3.911.581 en
20 4.032.504. Echter lijden glasvulstoffen, die een voldoende hoeveelheid barium bevatten om voldoende voor straling ondoorlaatbaar te zijn aan het nadeel, dat het glas aanmerkelijk oplosbaar is en het bariumion uit het glas wordt uitgelooft in een waterige omgeving en in het bijzonder in de mond. Men heeft zeer sterke aanwijzingen,
25 dat barium in deze vorm een toxisch gevaar oplevert.

Er zijn recente pogingen gedaan het bariumglas door andere voor straling ondoorlaatbare vulmaterialen te vervangen. Deze pogingen bestonden bij voorbeeld in het gebruik van sterk onoplosbare bariumzouten, zoals bariumcarbonaat en bariumsulfaat in combinatie
30 met de kiezelzuurhoudende vulstof. Echter waren deze versterkende keramische materialen onbevredigend met betrekking tot de mechanische sterkte van het verkregen preparaat.

790 7202

Het Amerikaanse octrooischrift 3.959.212 openbaart het gebruik van een fijnverdeeld kristallijn silicaathoudend barium en met name calcium-bariumsilicaat in kristallijne vorm voor gebruik in een rechtstreeks tandvulpreparaat, dat een polymeriseerbaar bindmiddel, een katalysatorstelsel voor het polymeriseren van het bindmiddel en een fijnverdeelde anorganische vulstof bevat, waarvan ten minste een deel is gevormd uit het voor straling ondoorlaatbare kristallijne calciumbariumsilicaat. Ofschoon dit preparaat enige verbetering verschaft met betrekking tot de oplosbaarheid van het bariumbestanddeel van de anorganische vulstof, is het nog niet geheel bevredigend met betrekking tot de uitloogbaarheid van het bariumbestanddeel en de voor straling ondoorlaatbaarheid van het preparaat.

Er is ook voorgesteld, bij voorbeeld in het Amerikaanse octrooischrift 3.971.754 en in de Amerikaanse octrooischriften 3.973.972 en 4.017.454 voordeel te trekken van het sterke röntgenstraal-absorberende vermogen van atomen van hoog atoomgewicht. Zo openbaart het Amerikaanse octrooischrift 3.971.754 keramische vulpreparaten, waarin röntgenstraal-absorberende atomen worden gebruikt, gekozen uit lanthaan, strontium en tantalum en bijkomstig hafnium in de vorm van oxyden, carbonaten of fluoriden. Volgens het Amerikaanse octrooischrift 3.971.754 bevatten de verbindingen van de röntgenstraal-absorberende atomen ongeveer 5-60% en bij voorkeur 45-40% van het totale gesmolten glasmengsel, dat dan in de Herstellende matrix wordt opgenomen.

De vermelde Amerikaanse octrooischriften 3.973.972 en 4.017.454 openbaren transparante, kleurloze glaskeramieken met een lage expansiecoëfficiënt, een groot absorptievermogen voor röntgenstralen en die nuttig zijn in tandherstellpreparaten, waarin het glaskeramische preparaat omvat ongeveer 10 tot ongeveer 20% La_2O_3 en tot ongeveer 7 gew.% Ta_2O_5 , behoudens de andere glascomponenten, die in hoofdzaak zijn SiO_2 , Al_2O_3 , Li_2O , P_2O_5 en ZrO_2 . In dit mengsel is La_2O_3 de belangrijkste röntgenstraal-absorberende verbinding en tantalum-oxyde, tezamen met zirkooniumoxyde, werkt als een kernvormend middel.

790 7202

Bovendien suggereert het Amerikaanse octrooischrift 3.801.344 dat andere voor straling ondoorlaatbare oxyden, zoals strontiumoxyde of lanthaanoxyde en andere zeldzame aardoxyden van de lanthanide-reeks, nr. 57-71, zoals samariumoxyde, dysprosiumoxyde en ter-
5 biumoxyde kunnen worden toegepast ofschoon het lanthaanoxyde in het algemeen een ongewenste kleur aan de tandvul- en frontpreparaten verleent, wat eveneens het geval is bij praseodymiumoxyde. Verwezen wordt naar het Amerikaanse octrooischrift 3.801.344, kolom 3, regel 55 - kolom 4, regel 2.

10 Al de bovenvermelde benaderingen, waarbij verschillende glas-soorten worden gebruikt, verschillen van de hierna te beschrijven preparaten. Het vervaardigen van dergelijke glassoorten is moeilijk, duur en biedt een probleem in termen van het evenaren van de brekingsindex van de hars.

15 Er is thans gevonden, dat de hoeveelheid röntgenstraal-absorberende zeldzame aardelementen van hoog atoomgewicht belangrijk kan worden verlaagd door gebruik van hetzij thoriumoxyde (ThO_2) of (Ta_2O_5) als in hoofdzaak de enige röntgenstraal-absorberende componenten in een anorganisch-deeltjesvormig vulpreparaat, zoals silica,
20 glas enz. terwijl tezelfdertijd al de noodzakelijke eigenschappen vereist voor gevulde polymeerharsmengsels voor gebruik in de tandheelkunde of andere doeleinden, waar ondoorlaatbaarheid voor straling gewenst is, worden verschaft.

Het was bekend gebruik te maken van het vermogen van thorium
25 röntgenstralen te absorberen in röntgenstraalcontrastvloeistoffen. Zo wordt in het Amerikaanse octrooischrift 1.918.884 een thoriumdioxide-sol beschreven voor gebruik als contrastmedium in de röntgenstraalfotografie. In het Amerikaanse octrooischrift 2.065.718 wordt een waterige suspensie van thoriumhydroxyde beschreven en het
30 Amerikaanse octrooischrift 3.368.944 beschrijft een röntgencontrast-medium met een dichtheid van 0,8-1,1, waarin het röntgenstraal-absorberende materiaal thoriumoxyde kan zijn.

Echter wordt gemeend, dat nimmer thoriumoxyde of thalliumoxyde alleen ooit is voorgesteld of gebruikt als het röntgenstraal-
35 absorberende bestanddeel in tandvulpreparaten. De mengsels volgens

de uitvinding bezitten mechanische sterkte en andere fysische eigenschappen, die gewenst zijn in tandherstelpreparaten.

Het is derhalve een doel van de onderhavige uitvinding een vulpreparaat te verschaffen, geschikt voor gebruik bij tandherstel-
5 werkzaamheden, omvattend ten minste één component in ondergeschikte hoeveelheden met een sterk röntgenstraal-absorberend vermogen, die in hoofdzaak kleurloos of doorschijnend is, aanwezig is in fijnverdeelde vorm en in hoofdzaak geheel onoplosbaar in water of mond-omgeving is.

10. Het is ook een hoofddoel van de uitvinding een tandherstelpreparaat te verschaffen uit een gebruikelijk polymeriseerbaar harsbindmiddel, een katalysator daarvoor en fijnverdeelde anorganische vulstof, geschikt om met het bindmiddel te worden gecombineerd. Het samengestelde materiaal vertoont een grote absorptie voor
15 röntgenstraling met korte golflengte, zoals toegepast in de tanddiagnostiek, het bezit een betrekkelijk lage thermische uitzettingscoëfficiënt, een geringe toxiciteit, grote mechanische sterkte en optische doorschijnendheid, die die van het tandemail evenaart.

Deze en andere doeleinden van de onderhavige uitvinding
20 worden verschaft door een voor straling ondoorlaatbaar tandherstelpreparaat van het type, gevormd uit een vloeibaar polymeriseerbaar organisch harsbindmiddel en fijnverdeelde, inerte, anorganische vulstofdeeltjes, waarbij als in hoofdzaak het enige röntgenstraal-absorberend bestanddeel van de vulstofdeeltjes wordt gebruikt onge-
25 veer 3 tot ongeveer 10 gew.% van de totale vulstof thoriumoxyde (ThO_2), tantalumoxyde (Ta_2O_5) of een mengsel van thoriumoxyde (ThO_2) en tantaliumoxyde (Ta_2O_5).

Dientengevolge verschaft de onderhavige uitvinding een voor straling ondoorlaatbaar materiaal, dat bijzonder geschikt is als
30 tandherstellend preparaat, omvattend een polymeriseerbaar harsbindmiddel, een katalysator voor het bindmiddel en een fijnverdeelde anorganische vulstof, bevattend een kleinere hoeveelheid van een sterk röntgenstraal-absorberend oxyde, dat onoplosbaar en niet uitloogbaar is en dat het preparaat niet mechanisch verzwakt en dat is

7907202

gekozen uit thoriumoxyde en tantaliumoxyde of een mengsel daarvan. Het vulmateriaal is in hoofdzaak vrij van oplosbare of uitloogbare bestanddelen, zoals barium.

5 Het grootste deel van de vulstofcomponent van het samengestelde materiaal kan in hoofdzaak elke kiezelzuurhoudende vulstof in deeltjesvorm zijn, zoals bij voorbeeld amorf silica, gesmolten silica, kwarts, kristallijn silica, natriumglaskorrels, keramische oxyden, deeltjesvormig silicaatglas of synthetische kristallijne materialen, zoals β -eucryptiet (LiAlSiO_4).

10 Het thoriumoxyde of tantalumoxyde alleen of mengsels van deze beide oxyden wordt als zodanig aan de anorganische kiezelzuurvulstof toegevoegd en eenvoudig gelijkmatig onderling gemengd volgens elke geschikte mengtechniek, waaronder met de hand en mechanisch mengen.

15 Het vulstofmengsel bevindt zich in fijnverdeelde deeltjesvorm, die bij voorbeeld een zeef van 325 mesh kunnen passeren. Bij voorkeur bedraagt de gemiddelde diameter van de vulstofdeeltjes ongeveer 30 micron of minder, liefst ongeveer 2-5 micron of minder.

In afwijking van gebruikelijke voor straling ondoorlaatbare
20 vulstofmengsels waarin bariumglas wordt gebruikt, die ongeveer 35% of meer bariumglas bevatten, is het slechts noodzakelijk een zo geringe hoeveelheid als ongeveer 10 gew.% of minder van de oxyden van thorium en/of tantalum in de vulstofmengsels volgens de onderhavige uitvinding op te nemen. Dit betekent een groot econo-
25 misch voordeel. Dit is althans ten dele te danken aan de sterke ondoorlaatbaarheid voor straling van thorium en tantalum vergeleken met barium, waardoor de oxyden van eerstgenoemde elementen doelmatiger zijn op een gewichtsbasis dan bariumoxyde. Zo zijn 0,497 dln Ta_2O_5 en 0,236 dln ThO_2 gelijkwaardig aan één deel BaO in termen
30 van ondoorlaatbaarheid voor röntgenstralen. Bij voorbeeld is gevonden, dat 1 g thorium gelijkwaardig is aan ongeveer 4,3 g barium in termen van het vermogen röntgenstralen te absorberen. Dit betekent omgerekend ongeveer 13,1 g bariumglas (32 gew.% barium) per gram thoriumoxyde (ThO_2) en 7,9 g bariumglas/g Ta_2O_5 .

7907202

Dientengevolge behoeven de bij de onderhavige uitvinding gebruikte voor röntgenstraal ondoorlaatbare vulstofmengsels slechts ongeveer 3 gew.% thoriumoxyde te bevatten met een preferentie van ongeveer 3-5 gew.% thoriumoxyde als dit als enig röntgenstraal-
5 absorberend bestanddeel wordt toegepast. Wordt tantalumoxyde in de vulstofmengsels toegepast, dan is een geprefereerde hoeveelheid ongeveer 4-10 gew.% van het oxyde, gebaseerd op het totale vulstofmengsel.

Het vulpreparaat, dat de röntgenstraal-absorberende oxyde
10 of oxyden bevat wordt gemengd met het anorganische polymere bindmiddel in elke geschikte verhouding, bij voorbeeld ongeveer 20-80 gew.dln vulstof op ongeveer 20-80 gew.dln organisch-polymeerbindmiddel. Echter zijn sterker gevulde mengsels bijzonder geschikt in tandherstelpreparaten. De gewichtsverhouding van vulstof tot
15 polymeriseerbare en andere reactieve monomeren in het bindmiddelstelsel bedraagt bij voorkeur ongeveer 1:1 tot ongeveer 6:1, in het bijzonder 3:1 tot ongeveer 5:1. Optimaal maakt de vulstof ongeveer 65-85 gew.% van de combinatie van vulstof en bindmiddel uit.

De organische polymeriseerbare monomeren kunnen ruim worden
20 gekozen, doch in het bijzonder voor tandhersteldoeleinden is het bij voorkeur een dimethacrylaat zoals 2,2-propaanbis[3(4-fenoxy)-1,2-hydroxypropaan-1-methacrylaat], gewoonlijk aangeduid als BIS-O-MA, gemengd met andere dimethacrylaten. Geschikte harsmaterialen worden bij voorbeeld beschreven in de eerder genoemde octrooi-
25 schriften, alsook in de Amerikaanse octrooischriften 3.066.112 , 3.179.623 en 4.032.504, waarvan de inhoud als hier opgenomen geldt. Andere geschikte stelsels waarin de tantalumoxyde en/of thoriumoxyde röntgenstraal-absorberende vulstofdeeltjes kunnen worden toegepast worden bij voorbeeld beschreven in de Amerikaanse octrooi-
30 schriften 3.539.533, 3.709.866, 3.730.947. 3.751.399, 3.766.132, 3.774.305, 3.835.090, 3.845.009, 3.853.962, 3.860.556 en 3.991.008, welker inhoud als hier opgenomen wordt beschouwd.

7907202

Het samengestelde harsmengsel volgens de uitvinding bestaat uit een vloeibaar harsbindmiddelstelsel, omvattend de polymeriseerbare monomeer(en) en andere reactieve monomeren (vaak aangeduid als "reactieve verdunningsmiddelen" voor het verlagen van de viscositeit van het bindmiddel tot een kneedbare pasta), katalysator of initiator en een versneller of activator (de katalysator en de versneller reageren onder vorming van vrije radicalen, die de polymerisatiereactie katalyseren) en de fijnverdeelde anorganische vulstof. Het bindmiddelstelsel kan ook stabiliseermiddelen voor het verlengen van de gebruiksduur van de niet gepolymeriseerde, samengestelde harsmengsels bevatten, alsmede UV-absorptiemiddelen. Het mengsel kan worden bereid bij voorbeeld door het mengen van elk der bovenvermelde bestanddelen op elke geschikte wijze, bij voorkeur na het behandelen van de vulstof met een geschikt silaankoppelingsmiddel op een wijze, die ook in de stand van de techniek bekend is. Voorbeelden van geschikte koppelingsmiddelen omvatten bij voorbeeld vinyltrichloorsilaan, tris-(2-methoxyethoxy)silaan, tris-(acetoxyl)silaan, 1N-(vinylbenzylaminoethyl)amino-propyltrimethoxysilaan-3, 3-methacryloxypropyltrimethoxysilaan, enz. Het silaankoppelingsmiddel kan ook worden toegevoegd aan het polymeriseerbare harsbindmiddel vóór de toevoeging van de anorganische deeltjesvormige vulstof. Voorts kan elk der bestanddelen vooraf worden gemengd vóór de toevoeging van de andere bestanddelen. Het verdient aanbeveling de katalysator en het polymeriseerbare harsbindmiddel gescheiden te houden juist vóórdat het mengsel zal worden gebruikt. Deze technieken zijn op dit gebied bekend en maken op zichzelf geen deel van de uitvinding uit. Een speciaal verpakkingssysteem is beschreven in het Amerikaanse octrooischrift 3.936.906, waarnaar in dit verband wordt verwezen.

30 Het tandherstellend preparaat volgens de uitvinding omvat ongeveer 20-80 gew.dln, bij voorkeur ongeveer 20-50 gew.dln van het (de) polymeriseerbare monomeer(en) en andere eventuele reactieve monomeren, ongeveer 0,1 tot ongeveer 3 gew.% katalysator, ongeveer 0,1 tot ongeveer 2,0 gew.% versneller, waarbij de gewichten van

7907202

katalysator en versneller gebaseerd zijn op het gewicht van de polymeriseerbare en reactieve monomeren, ongeveer 0 tot ongeveer 5%, bij voorkeur ongeveer 1 tot ongeveer 4% gebaseerd op het gewicht van de polymeriseerbare en reactieve monomeren van een
5 silaankoppelingsmiddel en ongeveer 20 tot ongeveer 80 gew.dln, bij voorkeur ongeveer 50-80 gew.dln fijnverdeeld vulstofmengsel, waarin de vulstof omvat ongeveer 3 tot ongeveer 10 gew.% thoriumoxyde of thoriumoxyde en tantalumoxyde, bij voorkeur ongeveer 3-7 gew.% thoriumoxyde of ongeveer 3-5 gew.% thoriumoxyde en onge-
10 veer 1-7 gew.% tantalumoxyde.

Het mengsel kan ook andere bestanddelen bevatten, zoals bij voorbeeld polymerisatievertragers, stabilisatoren, UV-absorptiemiddelen, waarvan de aard en de hoeveelheden uiteraard afhankelijk zijn van de aard en de hoeveelheden van het polymeriseerbare hars-
15 bindmiddel, alsmede pigmenten of kleurstoffen, bij voorbeeld ijzeroxyden, cadmium-gelen en oranje's, fluorescerende zinkoxyden, titaandioxyde enz. in hoeveelheden, vereist om het geharde samengestelde materiaal meer de natuurlijke kleur van het tandemail, waarmee het preparaat wordt gebruikt, te doen benaderen.
20 De uitvinding wordt nader toegelicht aan de hand van onderstaand voorbeeld.

Voorbeeld I

Voor het vergelijken van de snelheden en hoeveelheden van elutie van de voor straling ondoorlaatbare tandpreparaten volgens
25 de uitvinding met de gebruikelijke voor straling ondoorlaatbare tandpreparaten, waarin bariumglasvulstoffen worden toegepast, werden monsters van glazen geroerd in

- (a) water gebufferd op een pH van 7 met ammoniumacetaat en in
- (b) gedestilleerd water.

30 Na 1 uur werd de waterige fase verwijderd en vervangen door een verse waterige fase. De verkregen waterige oplossingen, na verwijdering van de geharde preparaten, werden onderworpen aan atoomabsorptieanalyse, onder toepassing van een Perkin-Elmer model 306AA toestel.

7907202

De volgende resultaten werden verkregen:

TABEL A

Barium elutie uit Corning 7724 glas in gedestilleerd water^a

5	Extractie	pH	Ba in water (dpm)	Ba geëxtraheerd per g glas (ug)
	1	8,9	125	250
	2	9,0	140	280
	3	9,0	115	230
10	4	9,0	90	180

TABEL B

Barium elutie uit Corning 7724 glas in gebufferd water^b

	Extractie	pH	Ba in H ₂ O (dpm)	Ba geëxtraheerd per g glas (ug)
15	1	8,8-9,1	400	800
	2	8,7-9,0	450	900
	3	8,6-8,9	250	500
	4	8,2-8,5	250	500

a) 25 g glas een uur geroerd met 50 cm³ gedestilleerd water

20 b) 50 g glas één uur geroerd met 100 cm³ water, dat 0,1 g ammonium-acetaat bevat.

Voorbeeld II

Een soortgelijke extractiebehandeling van Kimble's Ray-Sorb T-2000 in gebufferd water (1 g ammoniumacetaat/1000 g water), oorspronkelijk op pH 7, veroorzaakte een verhoging in pH tot 9,5 en meer dan 500 dpm barium werden in 1 uur geëluëerd.

Voorbeeld III

Een vulstof voor een voor straling ondoorlaatbare samengestelde hars werd bereid door mengen van 2,4 g ThO₂ (verkregen van J.T.Baker Chemical Co. Phillipsburg, N.J., 325 mesh) en 76,4 g IMSIL A-10 (een amorf silica met deeltjesgrootte kleiner dan 10 micron, verkregen van Illinois Minerals Co.) Het mengsel bevatte ondergeschikte hoeveelheden (minder dan 0,001 g) pigmenten ter verkrijging van een tandkleur. Deze vulstof werd zeer goed gemengd onder toepassing van

7907202

een elektrisch mortier met vijzel met 26,2 g van een mengsel, bestaande uit 12,5 g BIS-GMA (afkomstig van Freemann Chemical Co.), 12,5 g hexamethyleendimethacrylaat (afkomstig van Sartomer Resins Co.) en 1,2 g γ -methacroyloxypropyltrimethoxysilaan. Aan de helft van de verkregen pasta werd toegevoegd 4 gew.% gebaseerd op het gewicht van de monomeren cumeenhydroperoxyde terwijl aan de andere helft werd toegevoegd 2 gew.% gebaseerd op het gewicht van de monomeren acetylthioureum (afkomstig van Eastman Chemicals Corporation). Verschillende gelijke kleine porties van de twee pasta's werden zeer goed gemengd met een spatel, het mengsel gebracht in een teflonvorm voor het vervaardigen van cilinderd voor het uitvoeren van samendrukbaarheidsproeven. De beproeving (Instronmachine) toonde, dat de geharde samengestelde monsters een gemiddelde samendrukbaarheidssterkte van ongeveer 3150 kg/cm bezaten.

Röntgenstraalonderzoek, onder toepassing van technische röntgenstraalapparatuur toonde dat het ThO_2 -bevattende samengestelde materiaal een ondoorlaatbaarheid voor röntgenstralen bezat, gelijkwaardig aan een mengsel, dat een vulstof bevatte, bestaande uit 50 gew.% amorf silica en 50 gew.% Corning 7724 bariumglas.

20 Voorbeeld IV

Een tandherstelpreparaat werd bereid als beschreven in voorbeeld II met uitzondering, dat de vulstof bestond uit 4 g tantalumpentoxyde (ongeveer 400 mesh, afkomstig van Kawecki Berylco Industries, Inc.) en 74,8 g IMSIL A-10. Het geharde mengsel had fysische eigenschappen soortgelijk aan die, beschreven in voorbeeld II en een ondoorlaatbaarheid voor röntgenstralen gelijk aan dat van een samengesteld materiaal dat een vulstof bevatte, bestaande uit 50 gew.% Corning 7724 bariumglas.

7907202

C o n c l u s i e s

1. Voor straling ondoorlaatbaar tandherstelpreparaat van het type, gevormd uit een vloeibaar polymeriseerbaar organisch harsbindmiddel en fijnverdeelde inerte, anorganische voor straling ondoorlaatbare vulstofdeeltjes, met het kenmerk, dat als in hoofdzaak
5 het enige röntgenstraal-absorberende bestanddeel van de voor straling ondoorlaatbare vulstofdeeltjes wordt toegepast ongeveer 3-10 gew.% van de totale vulstof thoriumoxyde of tantalumoxyde of een mengsel van thoriumoxyde en tantalumoxyde.
2. Preparaat volgens conclusie 1, met het kenmerk, dat de voor
10 straling ondoorlaatbare vulstofdeeltjes 95-97 gew.% kiezelzuurhoudende of keramische vulstofdeeltjes bevatten en 3-5 gew.% thoriumoxyde.
3. Samengesteld mengsel volgens conclusie 1, met het kenmerk, dat de voor straling ondoorlaatbare vulstofdeeltjes 90-96 gew.%
15 kiezelzuurhoudende of keramische vulstofdeeltjes bevatten, 3-5 gew.% thoriumoxyde en 1-7 gew.% tantalumoxyde.
4. Samengesteld mengsel volgens conclusie 1, met het kenmerk, dat de voor straling ondoorlaatbare vulstofdeeltjes omvatten ongeveer 90-96 gew.% kiezelzuurhoudende of keramische vulstofdeeltjes
20 en ongeveer 4-10 gew.% tantalumoxyde.
5. Fijnverdeeld deeltjesvormig vulstofpreparaat, dat onoplosbaar en niet uitloogbaar is in een waterig milieu, in hoofdzaak kleurloos of doorschijnend is en dat ondoorlaatbaarheid voor röntgenstralen verleent aan een tandherstelpreparaat dat met het
25 vulstofmengsel is gevuld, met het kenmerk, dat het mengsel in hoofdzaak bestaat uit een gelijkmatig mengsel van ongeveer 90 tot 97 gew.% kiezelzuurhoudende, glazen- of keramische vulstofdeeltjes en ongeveer 3-10 gew.% thoriumoxyde of tantalumoxyde of een mengsel van thoriumoxyde en tantalumoxyde, waarbij het oxyde of de oxyden
30 in hoofdzaak de enige in het genoemde mengsel aanwezige röntgenstraal-absorberende materialen zijn.

7907202