

氏 名	みやざきとしき 宮 崎 とし き 樹
学位(専攻分野)	博 士 (工 学)
学位記番号	論 工 博 第 3673 号
学位授与の日付	平 成 14 年 5 月 23 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 4 条 第 2 項 該 当
学位論文題目	PREPARATION OF TANTALUM- OR NIOBIUM- BASED BIOACTIVE MATERIALS BY CHEMICAL SURFACE MOD- IFICATION (化学表面処理によるタンタルもしくはニオブを主成分とする生体活性材料 の調製)
論文調査委員	(主 査) 教 授 小 久 保 正 教 授 平 尾 一 之 教 授 岩 田 博 夫

### 論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、靱性に優れ、しかも体内で表面に骨類似アパタイトを形成して、それを介して骨と結合する生体活性を示す、骨修復材料の設計指針を明らかにするために、タンタルもしくはニオブを主成分とする材料に生体活性を付与する条件を追究した結果をまとめたものであって、序論、本論6章及び総括からなっている。

序論では、人工材料が骨と結合する生体活性を示すための必須条件は、体液環境下でその表面に骨類似アパタイト層を形成することであり、これまでに材料表面の Si-OH や、Ti-OH 基がアパタイトの核形成を誘起することが知られているが、その他のアパタイト形成に有効な官能基はほとんど明らかにされていないことを述べている。

第1章では、酸化タンタル(V)ゲルならびに種々の組成のタンタル酸ナトリウムゲルのアパタイト形成を擬似体液中で調べた結果を述べている。酸化タンタル(V)ゲル表面の Ta-OH 基は擬似体液中でアパタイトの核形成を誘起し、さらに同ゲルのアパタイト形成能は、ゲル中にナトリウムイオンを含有させることにより促進されることを明らかにしている。

第2章では、タンタル金属に水酸化ナトリウム水溶液処理を施し、これら金属のアパタイト形成を擬似体液中で調べた結果を述べている。タンタル金属は、水酸化ナトリウム水溶液処理により表面にタンタル酸ナトリウムゲル層を形成し、その結果、擬似体液中で短期間にアパタイトを形成するようになることを明らかにしている。

第3章では、水酸化ナトリウム水溶液処理を施したタンタル金属のアパタイト形成能に及ぼす加熱処理の影響について調べた結果を述べている。同金属は水酸化ナトリウム水溶液処理に引き続いて 300°C で加熱処理を行うと、表面のタンタル酸ナトリウムゲル層をち密な非晶質層に変化させ、そのアパタイト形成能を低下させることなく、機械的特性を向上することを明らかにしている。

第4章では、第3章と同じ表面処理を施したタンタル金属上に擬似体液中で形成されるアパタイト層について、その界面の構造と接着強度を調べた結果を述べている。上記表面処理を施したタンタル金属表面に形成されたアパタイト層は、その組成を表面から内部にかけて徐々にタンタルに変化させる傾斜構造を形成するので基板と強固に結合することを明らかにしている。

第5章では、第3章と同じ表面処理を施したタンタル金属上に擬似体液中でアパタイトが形成される過程を、X線光電子分光法により調べた結果を述べている。上記処理を施したタンタル金属を擬似体液に浸漬すると、まず、その表面からナトリウムイオンが溶出し、代わって H<sub>3</sub>O<sup>+</sup> イオンがとり込まれ、その表面に Ta-OH 基が生成し、この Ta-OH 基が直ちに擬似体液中のカルシウムイオンと結合してタンタル酸カルシウムを形成し、次いでリン酸イオンと結合してアパタイトを形成することを明らかにしている。

第6章では、種々の構造の酸化ニオブ(V)ゲルならびに、水酸化ナトリウム水溶液処理されたニオブ金属についてアパタイト形成を擬似体液中で調べた結果を述べている。非晶質構造もしくは斜方晶構造を有する酸化ニオブ(V)ゲル表面の Nb-OH 基は、擬似体液中でアパタイトの核形成を誘起するが、単斜晶構造を有する酸化ニオブ(V)ゲルや、水酸化ナト

リウム水溶液で処理されたニオブ金属表面のNb-OH基はアパタイトの核形成を誘起しないことを明らかにしている。

総括では、本研究の結果の概要を述べ、Ta-OH基ならびにNb-OH基は、体液環境下でアパタイトの核形成を誘起し得る官能基の1つであり、これらの官能基を材料表面に多数形成させれば、タンタルもしくはニオブを主成分とする新規な高靱性生体活性材料を得ることができると結論している。

#### 論文審査の結果の要旨

本論文は、靱性に優れ、しかも体内で表面に骨類似アパタイトを形成して、それを介して骨と結合する、生体活性な骨修復材料を設計する指針を明らかにするために、タンタルもしくはニオブを主成分とする材料に生体活性を付与する条件を追究した成果についてまとめたものであり、得られた主な結果は次のとおりである。

- i) 酸化タンタル(V)ゲル及び酸化ニオブ(V)ゲルの疑似体液中におけるアパタイト形成能を調べ、これらゲル表面のTa-OH基及びNb-OH基がアパタイトの核形成を誘起することを明らかにした。
- ii) タンタル金属は、水酸化ナトリウム水溶液処理により表面にタンタル酸ナトリウムゲル層を形成し、疑似体液中で短期間にアパタイトを形成するようになることを明らかにした。
- iii) 同金属は、上記処理に続く加熱処理により、タンタル酸ナトリウムゲル層を緻密な非晶質層に変化させ、そのアパタイト形成能を低下させることなく、機械的特性を向上させることを明らかにした。
- iv) 上記処理を施したタンタル金属表面での疑似体液中におけるアパタイトの形成は、同液中でその表面に形成されるTa-OH基が、先ずカルシウムイオンと結合してタンタル酸カルシウムを形成し、次いでリン酸イオンと結合する過程を経て生じることを明らかにした。
- v) 上記過程で形成されるアパタイト層は、その組成を表面から内部にかけて徐々にタンタルに変化させる傾斜構造を有するので、基板と強固に結合することを明らかにした。

以上、要するに本論文は、酸化タンタル(V)及び酸化ニオブ(V)ゲル、水酸化ナトリウム水溶液処理を施したタンタル及びニオブ金属について、疑似体液中におけるアパタイトの形成能や形成過程を調べることにより、新規な高靱性生体活性骨修復材料を設計する指針を明らかにしたものであり、学術上、実際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は、博士(工学)の学位論文として価値あるものと認める。また平成14年4月8日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。