



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	Characterization of poly(L-lactic acid)/ organically modified montmorillonite nanocomposites synthesized by a solution intercalation method [an abstract of dissertation and a summary of dissertation review]
Author(s)	中西, 康
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(歯学)
Dissertation Number	甲第11703号
Issue Date	2015-03-25
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/58928
Rights(URL)	https://creativecommons.org/licenses/by-nc-sa/2.1/jp/
Type	doctoral thesis
File Information	Ko_Nakanishi_review.pdf, 審査の要旨



学位論文審査の要旨

博士の専攻分野の名称 博士（歯学） 氏 名 中西 康

主査 教授 飯 田 順 一 郎

審 査 担 当 者 副査 教授 吉 田 靖 弘

副査 教授 佐 野 英 彦

学 位 論 文 題 名

Characterization of poly(L-lactic acid)/organically modified montmorillonite nanocomposites
synthesized by a solution intercalation method

(ソリユーションインターカレーション法により作製した
ポリ-L-乳酸/有機化モンモリロナイトナノコンポジットの特性)

審査は主査、副査全員が一同に会して口頭で行った。はじめに申請者に対して本論文の概要の説明を求めたところ以下の内容について論述した。

今日、矯正歯科治療において絶対的な固定源としてチタン製の歯科矯正用アンカースクリュー（以下 AS）の使用頻度は増加している。しかし、埋入操作や除去操作に伴う破折に関する報告もあり、破折片の除去には侵襲的処置が必要になることも少なくはない。そこで我々は新規 AS の材料として生分解性ポリマーであるポリ乳酸（PLA）に着目した。PLA は生分解の観点から医療応用されている材料であるが、金属と比較し機械的強さが小さいという欠点がある。我々は PLA の機械的強さを向上させるため複合材料化することを考え、フィラーとして層状ケイ酸塩を選択した。本研究の目的は、solution intercalation 法を用いてポリ乳酸/層状ケイ酸塩ナノコンポジットを作製し、各種特性を評価することである。

材料には PLA としてポリ-L-乳酸（PLLA）（ビーエムジー）を、層状ケイ酸塩として有機化モンモリロナイト（OMMT）（NX，ホージュン）を用いた。PLLA を OMMT-クロロホルム懸濁液に溶解させるためスターラーで 4 時間の攪拌を行った（solution intercalation）。同溶液を室温下で 2 日間静置し、溶媒を揮発させ PLLA/OMMT コンポジットを作製した。なお、OMMT 含有量は 2、4 wt% とした。得られた PLLA/OMMT コンポジットを微細に粉碎して、X 線回折（XRD）測定を行った。さらに成型温度 190 °C での圧縮成形（アニーリング：110 °C、30 分間）を行い、成形体の透過型電子顕微鏡（TEM）観察、示差走査熱量測定（DSC）、3 点曲げ試験を行った。また、OMMT の生体安全性評価のために、OMMT 濃度を 0.1-30 ppm に調整した培養液中でヒト骨肉腫細胞（MG-63）、マウス骨芽細胞様細胞

(MC3T3-E1)を 37 °C、5 %CO₂ の条件下で 24 時間培養し、走査電子顕微鏡(SEM)を用いて細胞形態の観察を行い、さらに Cell Viability Assay kit (CellTiter-Glo™、Promega)を用いて細胞生存率を定量した。

XRD 測定では PLLA/OMMT ナノコンポジット内のシリケート層間距離の増加はわずかであった (3.5 nm → 3.8 nm) が、TEM 観察からは PLLA/OMMT ナノコンポジット内のシリケート層間距離が 5 nm におよぶ部位や、層の剥離も確認された。DSC の結果から、単体の PLLA およびナノコンポジット内の PLLA とともにガラス転移点は約 59 °C、融点は約 182 °C、結晶化度は約 48%と同等であることがわかった。また、DSC の昇温過程で冷結晶化に伴う発熱反応は見られなかったことから設定したアニーリング時間は十分だったと考えられた。3 点曲げ試験の結果より、OMMT の含有により PLLA の弾性率が向上することがわかった。OMMT 曝露下で培養した MG-63 および MC3T3-E1 の SEM 観察像から、両細胞に明らかな細胞破壊像は見られなかった。さらに、細胞生存率は OMMT の濃度によらず MG-63 で 90%以上、MC3T3-E1 で 80%以上であった。

以上の検討から、結論として、solution intercalation 法によりポリ乳酸と同等の熱的特性、結晶化度を有したまま機械的強さが向上したポリ乳酸/層状ケイ酸塩ナノコンポジットの作製に成功した。また、ポリ乳酸の生分解後の組織内残留 OMMT について、一定の安全性を確認できた。この方法により作製したポリ乳酸/層状ケイ酸塩ナノコンポジットは新規歯科矯正用アンカースクリュー開発への応用が期待される。

引き続き論文内容及び関連事項について、以下の項目を中心に質疑応答がなされた。

- (1) OMMT に着目した根拠とその利点について
- (2) ポリ乳酸/層状ケイ酸塩ナノコンポジットの物性について
- (3) 物性の試験法について
- (4) 作成したナノコンポジットのその他の機能について
- (5) 今後の研究の展開について

申請者は、矯正用アンカースクリューへ応用する事を視野に入れて、PLLA/OMMT のナノコンポジットを作成しその構造、物性、安全性等を検討し、その有効性を明らかにした。開発されたナノコンポジットは、矯正用アンカースクリューその他の歯科への応用に留まらず、ドラッグデリバリーなど他の分野へも貢献しうることが考えられ、高く評価される。加えて、質疑応答から、申請者は本研究の内容を中心とした専門分野はもとより、関連分野について十分な理解と学識を有していることが確認された。以上から審査担当者全員は、学位申請者が博士(歯学)の学位を授与するに値するものと認めた。