

平成22年 4月 1日現在

研究種目：若手研究 (B)

研究期間：2008～2009

課題番号：20760074

研究課題名 (和文) 高次構造制御による生体吸収性プラスチック複合材料の高性能化

研究課題名 (英文) High Performance Bioresorbable Plastics Composite with Controlling of Higher Order Structures

研究代表者

小林 訓史 (KOBAYASHI SATOSHI)

首都大学東京・理工学研究科・機械工学コース・准教授

研究者番号：80326016

研究成果の概要 (和文)：

射出成形されたポリ乳酸 (PLA) の強度・剛性を向上させるため、鍛造法により分子配向制御と成形を同時に行う手法を開発した。鍛造によって PLA を高剛性化・高強度化することが可能となった。さらに、鍛造法によりスクリューを作製し引抜・せん断・ねじり試験を行ったところ、ガラス転移温度よりわずかに高温である 70℃ で鍛造したものの強度が優れていることを明らかにした。

研究成果の概要 (英文)：

In order to improve the mechanical properties of injection molded PLA, it was used the compressive molding at high pressure and comparatively at low temperature, called "forging process". Forged PLA has higher strength and higher elastic modulus than those of injection molded PLA. We made PLA screws with forging process or machining process. Mechanical properties of PLA screws were estimated by pull-out, shear in the diameter direction and twist tests. Screws forged at 70°C has best pull-out and shear strength in the diameter direction. There are no differences in shear strength calculated from torque test.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
20年度	2,400,000	720,000	3,120,000
21年度	900,000	270,000	1,170,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,300,000	990,000	4,290,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学・機械材料・材料力学

キーワード：材料設計・プロセス・物性・評価

1. 研究開始当初の背景

従来用いられてきている骨折固定材は、その多くが金属製であり、周囲組織の炎症や骨の弱화를防ぐために、治癒後速やかに体内から取り除く必

要がある。そこで、患者の負担を低減するために、再手術を必要としない生体吸収性を有するポリ乳酸(PLA)を用いた骨折固定材が、現在臨床応用され、研究が行われている。しかしながら本質的にプラ

スティックスである PLA は剛性が低いため口腔・顎顔面といった軽負荷部位にしか適用できない。このため生体活性セラミックスとの複合化や結晶化度・分子配向といった高次構造の制御により剛性を高める試みがなされてきているが、分子配向制御と骨固定材成形を同時に行う試みはなされていない。

2. 研究の目的

本研究では、完全生体吸収性複合材料であるリン酸三カルシウム/ポリ乳酸複合材料のせん断強度の向上を目的として、母相であるのポリ乳酸の結晶化度や分子配向度といった高次構造の制御の技術を利用、さらには混練工程を検討することにより、高負荷部位への実用に耐える骨接合材の成形法の開発を目的とする。更に申請者がこれまで行っている完全生体吸収性複合材料の力学的特性・分解特性に対する Micro-mechanical-chemical analysis を用いて、疾患の部位・程度に応じた力学的特性・分解特性を骨接合材料に与えるための手法を提案することによる、テーラーメイド医療の実現を最終目的とする。

3. 研究の方法

3.1 スクリュー作製

鍛造によりスクリューを作製した。まず、試験温度 (70°C もしくは 100°C) に熱した丸棒用金型に試験温度下に 10 分間放置した試験片をセットし、室温下で 300kN で 10 分間加圧した。それにより作製した丸棒をスクリュー用金型を使用して同様の手順で作製した。そして金型の形状上バリが生じてしまうので、ダイスによりバリを除去した。

また、比較のため、先述した試験温度にて鍛造丸棒を作製した後に、スクリュー用金型による鍛造を施さず、丸棒を直接ダイス加工することにより切削により作製されたスクリュー(以下機械加工スクリュー)も準備した。

3.2 熱処理

後述の結晶化度測定における結晶化度の比較のため未処理の試験片に、各成形温度、70°C、100°C で温度曝露時間に対応した 10 分及び 20 分の熱処理を施した試験片を作製した。

3.3 結晶化度測定

作製したスクリュー及び熱処理を施した試験片をより約 4mg の試料を切り出し示差走査熱量計にて結晶化度の測定を行った。

3.4 引抜強度測定

作製したスクリューを(株)島津製作所製、AGS-1000A と専用の治具を使用して引き抜き試験を行った。評価部は片端 5mm で、も

う片方の端部にはつかみ部での応力集中を防ぐためタブを貼り付けた。負荷速度は 0.5mm/min で行った。

3.5 直径方向せん断強度測定

作製したスクリューを(株)島津製作所製、AGS-1000A と専用の治具を使用して直径方向せん断強度測定を行った。負荷速度は 0.5mm/min で行った。

3.6 ねじり試験

作製したスクリュー全てに対して、スクリューの軸方向強度を測定するためにねじり試験を行った。専用の治具を使用し、作製されたスクリューの両端にタブとして六角ナットをアルルダイトにて接着した。トルクゲージに接続された負荷用モーターを回転させ、トルク荷重を負荷した。その荷重はロードセルを経由してスクリューに負荷される。

4. 研究成果

4.1 結晶化度

Fig. 1 に各種スクリュー及びスクリュー作製の結晶化度を示す。鍛造を施す事により概して結晶化度の上昇が早くなる事、また、丸棒のダイス加工中にも結晶化の進行が若干ではあるが、進行している事が確認できる。ダイス加工中に結晶化の進行が生じるのは加工の際に生じる熱が原因であると考えられる。

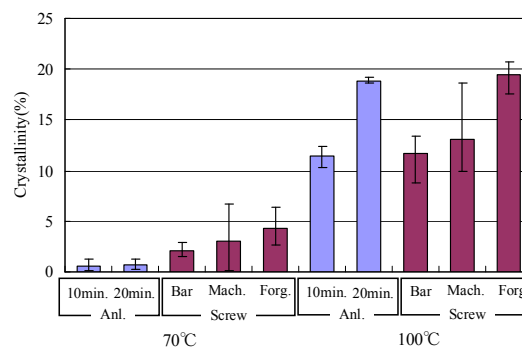


Fig. 1 Crystallinity of forged screws, machine cut screws and corresponding annealed specimens.

4.2 引抜強度

Fig. 2 にスクリュー引抜試験により得られた引き抜き強度を示す。70°Cでの成形では鍛造スクリューの方が強度が高い傾向が見られた。一方で 100°Cの成形温度では 70°Cとは逆の、加工スクリューの方が高い傾向が見られた。また、成形温度による強度差は、機械加工、鍛造スクリュー共に 70°Cの方が高い傾向が見られる。

100°Cで鍛造スクリューの方が強度が低い傾向が見られた原因は、後述するように 100°Cの鍛造スクリューでは 2 度の行程を経

過しているため、結晶化が他条件よりも進行し、その結晶化が過度であるため、ぜい性的な挙動を取る事で引き抜き強度が低下しているのではないかと考えることができる。

また、各条件の一部の試験片で負荷応力が12MPa前後に達したとき、Fig. 3に示すように、スクリー引き抜き以前にスクリー本体が破断した。このような現象が起きる原因の一つにスクリーの強度の個体差が大きく、スクリーの引き抜き強度に達する前にスクリーそのものの引張破壊している可能性が挙げられる。このような傾向を示したほぼ全ての試験片はFig. 3に示すような変形部と非変形部の境界で生じている。そのため、その周辺での強度が特に落ちているものと考えられる。

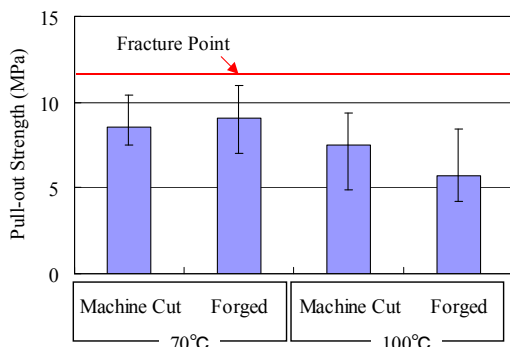


Fig. 2 Pull-out strength.



Fig. 3 Tensile fracture specimen in pull-out test.

4.3 直径方向せん断強度

Fig. 4に各種スクリーのせん断強度を示す。試験温度間の比較では、引き抜き強度と同じく、概して70°Cの方が強度が高いと言う結果が得られた。機械加工スクリーと鍛造スクリーに関しては両試験温度共に鍛造スクリーの方が高いと言う結果となった。

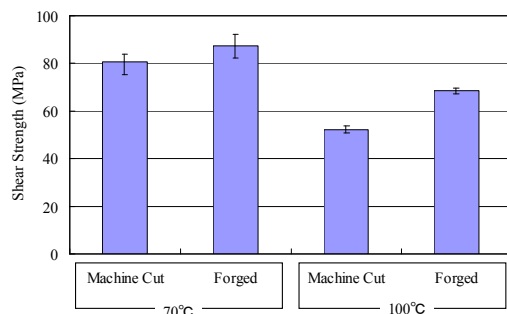


Fig. 4 Diameter direction shear strength.

4.4 ねじり試験

ねじり試験の結果により得られたねじり強度をFig. 5に示す。図から明らかなように、各条件のスクリー間の軸方向せん断強度はあまり大きな強度差はないものの、100°Cで作製したスクリーでは鍛造により作製したものの方が高い強度が得られている。一方で、70°Cのスクリーでは明らかな強度差は見られていない。

また、ねじり試験より得られた荷重-時間線図をFig. 6に示す。ここからわかるように、70°Cのスクリーは降伏後も非常に延性的な挙動を示す。

先述した直径方向のせん断強度と軸方向のせん断強度を比較すると、軸方向が顕著に低下していることがわかる。このことから、鍛造に伴うスクリーの異方性が示唆される。

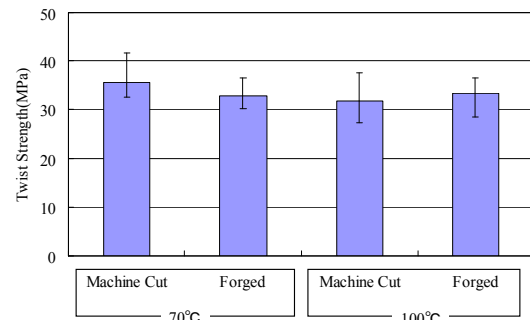


Fig. 5 Twist strength.

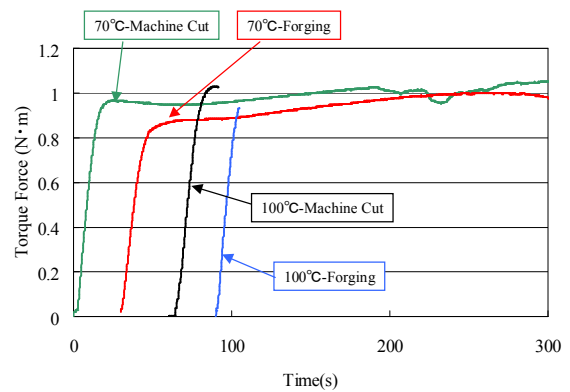


Fig. 6 Torque force-time curves.

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計5件)

- ① Satoshi KOBAYASHI, Kazuki SAKAMOTO, Bending and Compressive Properties of

- Crystallized TCP/PLLA Composites, Advanced Composite Materials, 査読有, Vol. 18, 2009, 287-295.
- ② Satoshi KOBAYASHI, Kazuki SAKAMOTO, Effect of hydrolysis on mechanical properties of tricalcium phosphate/poly-L-lactide composites, Journal of Materials Science: Materials in Medicine, 査読有, Vol. 20, 2009, 379-386.
- ③ Shusaku YAMADI, Satoshi KOBAYASHI, Effects of strain rate on the mechanical properties of tricalcium phosphate/poly(L-lactide) composites, Journal of Materials Science: Materials in Medicine, 査読有, Vol. 20, 2009, 67-74.
- ④ Shusaku YAMADI, Satoshi KOBAYASHI, Effect of Strain Rate on the Mechanical Properties of Crystallized Poly(L-lactide), Journal of Biomechanical Science and Engineering, 査読有, Vol. 3, 2008, 453-460.
- ⑤ Satoshi KOBAYASHI, Kazuki SAKAMOTO, Effects of Crystallinity on the Mechanical Properties of TCP/PLLA Composites, Journal of Solid Mechanics and Materials Engineering, 査読有, Vol. 2, 2008, 1232-1241.

[学会発表] (計 9 件)

- ① 小林訓史, ポリ乳酸スクリュウの成形とその特性評価, 成形加工シンポジウム 09, 2009 年 11 月, 長崎大学
- ② 小林訓史, 山地周作, リン酸三カルシウム/ポリ乳酸複合材料の力学的特性に及ぼすひずみ速度の影響, 第 14 回破壊力学シンポジウム, 2009 年 10 月, 石垣市
- ③ 小林訓史, 山地周作, リン酸三カルシウム/ポリ乳酸複合材料の力学的挙動の損傷力学解析, 日本実験力学学会 2009 年度年次大会, 2009 年 8 月, 拓殖大学
- ④ Shusaku YAMADI, Satoshi KOBAYASHI, Shinji OGIHARA, Effect of Strain Rate on the Mechanical Behavior of Hydrolyzed Tricalcium Phosphate/Poly (L-lactide) Composites, American Society for Composites 24th Annual Technical Conference, 2009 年 9 月, 米国・デラウェア
- ⑤ Satoshi KOBAYASHI, Shusaku YAMADI, Mechanical Behavior of Hydrolyzed Tricalcium Phosphate/ Poly (L-lactide) composites under Various Loading Rates, The 17th International Conference on Composite Materials, 2009 年 7 月, 英国・エジンバラ

- ⑥ 山本達郎, 小林訓史, 鍛造を施したポリ乳酸の力学的特性”, プラスチック成形加工学会 2009 年度年次大会, 2009 年 6 月, タワーホール船堀
- ⑦ 山本達郎, 小林訓史, 東藤貢, ポリ乳酸の力学的特性に及ぼす高次構造の影響, 日本機械学会第 21 回バイオエンジニアリング講演会, 2009 年 1 月, 札幌コンベンションセンター
- ⑧ 小林訓史, 山地周作, 損傷力学解析による生体吸収性複合材料の力学的挙動評価, 日本機械学会第 19 回バイオフロンティア講演会, 2008 年 9 月, 首都大学東京
- ⑨ Satoshi KOBAYASHI, Shusaku YAMADI, Effects of Loading Rates on Mechanical Behavior of Tricalcium Phosphate/Poly (L-lactide) Composites, The US-Japan Conference on Composite Materials 2008, 2008 年 5 月, 日本大学

6. 研究組織

(1) 研究代表者

小林 訓史 (KOBAYASHI SATOSHI)
 首都大学東京・大学院理工学研究科・准教授
 研究者番号 : 80326016

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし