

RESUMEN

Durante años la cirugía ortopédica reparadora ha estado utilizando injertos de hueso autólogo para reparar defectos óseos. Sin embargo, el uso de este tipo de implantes presenta ciertos inconvenientes, como una disponibilidad limitada del hueso propio (autoinjerto) o la aparición de dolor crónico asociado con su recolección. Todo ello ha impulsado el desarrollo y uso de biomateriales sintéticos como sustitutos óseos. Hoy en día existe una creciente demanda de materiales sintéticos para la regeneración ósea. Además, existe un gran potencial para el uso de estos materiales como soportes de las propias células del paciente o factores de crecimiento recombinantes (FG) para acelerar y mejorar la calidad de la regeneración ósea, lo que se conoce como *Ingeniería de Tejidos*.

La *Ingeniería Tisular* consiste en la combinación de las células con un material que actúa como soporte (*scaffold*), de manera que se proporcionen unas condiciones adecuadas que conduzcan a la formación de tejido óseo. Entre los materiales utilizados para este propósito se encuentran las biocerámicas, como el hidroxiapatito (HA, $\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{OH})_2$) y el β -fosfato tricálcico ($\beta\text{-Ca}_3(\text{PO}_4)_2$), β -TCP). Ambos, HA y TCP tienen una composición similar a la del componente mineral del hueso.

El Instituto de Cerámica de Galicia (ICG) de la Universidad de Santiago de Compostela, ha llevado a cabo investigaciones en el campo de los biomateriales desde 1988, y en concreto sobre la producción y diseño de biocerámicas fosfato de calcio. Estos materiales presentan una excelente biocompatibilidad, pero una tenacidad a fractura baja (1MPaVm) en comparación con la exhibida por el tejido óseo (2-12MPaVm). Este inconveniente ha limitado su aplicación clínica a zonas de baja demanda mecánica. Una vía para mejorar este inconveniente consiste en el uso de fases de refuerzo monocristalinas y biocompatibles con buena relación de aspecto. Además, la obtención de monocristales de este sistema (apatito) es interesante para otras aplicaciones, como el estudio de adhesividad celular o la adsorción de proteínas en la superficie, los estudios de los mecanismos de disolución, o estudios de las propiedades mecánicas dependiendo de la orientación del cristal.

El método de sales fundidas, es una técnica sencilla para obtener polvos cerámicos con morfologías diversas como "*whiskers*", "*platelet-like*", "*needle*", y estequiometría compleja. Este método permite sintetizar cristales de fosfato de calcio mediante un proceso de disolución-precipitación de polvos de TCP en sales fundidas.

Esta tesis presenta los resultados de la obtención y caracterización de fibras monocristalinas y biocompatibles, para su aplicación como fase de refuerzo en biocomposites para reparación ósea. Se ha estudiado en profundidad el crecimiento de monocristales de fosfato de calcio (CaPs) en sales fundidas. La caracterización de las muestras obtenidas se ha llevado a cabo utilizando diversas técnicas de análisis: microscopía electrónica (MEB-EDX); espectroscopía infrarroja (FT-IR); análisis químico (ICP); medida de concentración de cloruros en disolución con electrodo selectivo; interferometría de luz blanca (ILB); microscopía de fuerza atómica (MFA); y difracción de rayos-X de polvo y monocristal (DRX).

La tesis recopila los resultados de la síntesis de monocristales a partir de polvos de fosfatos de calcio de elevada pureza. A continuación se centra en el crecimiento de fibras

monocristalinas de clorapatito (ClAp), con diferentes tamaños (milimétricos y micrométricos), varias morfologías (prisma y aguja) y distintas características superficiales (rugosidad). La estructura cristalina ha sido refinada a partir de datos de difracción de monocristales y polvo. Además, se ha realizado un estudio de comportamiento “*in vitro*” en solución de Hanks a 37°C. Este estudio permite determinar la degradación de los cristales en condiciones que simulan el entorno fisiológico, y analizar los mecanismos de disolución que tienen lugar en la superficie de los mismos.

Uno de los principales objetivos planteados consiste en la obtención de cristales de Hidroxiapatito de dimensiones milimétricas. Para ello se ha estudiado la evolución química y estructural de monocristales de ClAp hacia HA bajo diferentes condiciones experimentales. La tesis proporciona una caracterización estructural detallada a partir de datos de difracción de monocristal de rayos-X de los cristales de composiciones binarias $(Ca_5(PO_4)_3Cl_x(OH)_{1-x})$ obtenidos durante el proceso de conversión. Todos los análisis realizados permiten analizar y extrapolar los fenómenos que ocurren en la naturaleza, donde es frecuente encontrar estructuras y composiciones similares a las que se han estudiado en esta tesis, como por ejemplo las de los apatitos de origen geológico y biológico (esmalte, dentina y hueso).

Por último, se incluyen los resultados de las propiedades mecánicas de las fibras monocristalinas de ClAp y composiciones binarias $(Ca_5(PO_4)_3Cl_x(OH)_{1-x})$ a partir de medidas de nanoindentación. Además, se muestra un pequeño estudio preliminar donde se analiza la posibilidad de aplicación de estos monocristales como fase de refuerzo en biocomposites.