

令和 2 年 5 月 19 日現在

機関番号：34419

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K06071

研究課題名(和文)力学負荷応答性自己強化金属インプラントの生理的荷重負荷応答性と実機設計

研究課題名(英文) Practical design of mechanical load responsive self-reinforced metallic implants against physiological loading

研究代表者

仲井 正昭 (Nakai, Masaaki)

近畿大学・理工学部・准教授

研究者番号：20431603

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：研究代表者らにより開発された弾性率自己調整金属は、変形誘起相変態により変形部の弾性率が上昇し、非変形部は低弾性率を示す。本研究では、この材料の応用として、力学負荷応答性自己強化金属インプラント開発の可能性について検討した。弾性率自己調整金属にひずみ量を系統的に変化させて引張変形を与えたところ、弾性変形領域における変形誘起相変態の発生が認められた。さらに、繰り返し荷重を印加した際の弾性率変化を計測し、一部の試験片では、繰り返し荷重負荷による弾性率の上昇も認められた。これらの実験結果から、力学負荷応答性自己強化金属インプラント開発の可能性が示唆される。

研究成果の学術的意義や社会的意義

既に超高齢社会となっている我が国では、骨疾患の症例数も増加しており、金属インプラントの使用機会が増加している。それにもかかわらず、我が国の金属インプラントの市場は、外国製品に頼っており、国産製品が占める割合は極めて小さい。これまでの金属インプラント開発においては、認可取得の困難さから、従来の素材を新素材に置き換えた事例はほとんどない。しかし、新素材の適用により新たな機能を有する金属インプラントが開発されれば、実際にそれを利用する医師や患者にとって有益であるとともに、外国製品との差別化より競争力のある国内産業の創出にも貢献すると考えられる。

研究成果の概要(英文)：In the metals with self-tunable elastic modulus developed by us, the elastic modulus is increased at the deformed part by the deformation-induced phase transformation, although low elastic modulus is maintained at the non-deformed part. In this project, as an application of the materials, the possibility of developing mechanical load responsive self-reinforced metallic implants was examined. When strain was systematically changed and applied to the materials, it was confirmed that the deformation-induced phase transformation occurred during elastic deformation. Further, when mechanical load was applied cyclically and then the change in elastic modulus was measured, an increase in the elastic modulus due to such the cyclic mechanical loading was obtained in a part of specimens. These experimental results indicate that the development of mechanical load responsive self-reinforced metallic implants is possible.

研究分野：生体材料学、金属材料学

キーワード：チタン合金 生体材料 変形誘起相変態 弾性率 インプラント

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

骨の内部では、外部からの力学負荷を感知し、この負荷に対応して骨組織を改変することで、各部位毎に力学特性の最適化がなされる。一方、研究代表者らが開発した弾性率自己調整金属は、外部からの力学負荷により、変形誘起相変態による微細組織変化が生じ、弾性率が上昇する。すなわち、骨も弾性率自己調整金属も、外部からの力学負荷に依存して、力学特性の自己最適化が生じるといえる。そこで、この共通性に基づき、骨のように外部からの力学負荷に応答して力学特性を自己最適化する金属インプラント(力学負荷応答性自己強化金属インプラント)の開発を目指した検討を開始した。

2. 研究の目的

本研究では、上記の新たなコンセプトに基づいた金属インプラント開発の実現に向けて、弾性率自己調整金属の力学負荷に対する微細組織的・力学特性的応答性について検討することを目的とした。

3. 研究の方法

代表的な弾性率自己調整金属である Ti-Cr 系合金 (Ti-12%Cr あるいは Ti-9%Cr-0.2%O) を溶製し、熱間加工後、溶体化処理を施し、供試材とした (以後、TiCr-ST と称する)。供試材から引張試験片を切り出し、インストロン型試験機を用いて、クロスヘッド速度  $8.33 \times 10^{-6} \text{ ms}^{-1}$  で、室温大気中にて引張試験を行った。引張試験は、破断まで行う通常の試験とともに、ひずみ量に依存した微細組織変化を観察するため、ひずみ量が 4.7%、12% あるいは 19% となるまで引張変形を付与した後、直ちに除荷する試験も行った (以後、4.7%、12%、19% の各ひずみ量の変形後および破断後の試験片を、それぞれ TiCr-4.7%、TiCr-12%、TiCr19% および TiCr-fractured と称する)。引張試験後の微細組織を透過電子顕微鏡 (TEM) で観察した。さらに、繰り返し力学負荷に対する力学特性の応答性を検討するため、疲労試験中の弾性率をその場測定することができる共振式疲労試験を行った。共振式疲労試験は応力制御で行い、最大繰り返し応力が 260MPa あるいは 300MPa となるように試験片に繰り返し荷重を印加した。

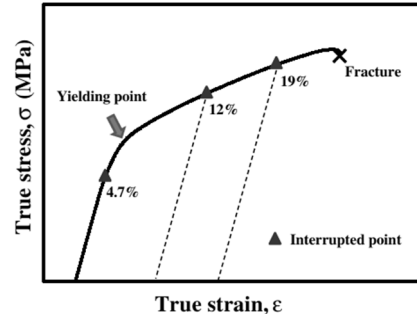


図 1 TiCr 合金の真応力 - 真ひずみ曲線と引張試験の途中で除荷したひずみ量

4. 研究成果

図 1 に TiCr 合金の真応力-真ひずみ曲線を示す。図中には、引張試験の途中で除荷した場合のひずみ量も併せて示している。ひずみ量が 4.7% では弾性変形、12% および 19% では塑性変形の範囲内であることがわかる。

図 2 に TiCr-ST、TiCr-4.7% および TiCr-12% の TEM 観察結果を示す。TiCr-ST の制限視野電子線回折 (SAED) パターンにおいて、相に由来する回折パターンに加えて、溶体化処理時の水冷により形成したと考えられる二つのバリエーションからなる非熱的相の反射が得られている (図 2(a))。図 2(a) 中に円で囲んだスポットで結像した暗視野 (DF) 像から、ナノサイズの微細な非熱的粒子が母相内に分布していることがわかる (図 2(b))。4.7% 変形後は、試験前に比べて、相の反射が二つのバリエーションとも強くなっている (図 2(c))。図 2(c) 中で赤色の円で囲んだスポットで結像した DF 像から、単一バリエーションの相 ( $\omega_1$ ) からなる細いラメラ組織の形成が認められる (図 2(d))。この

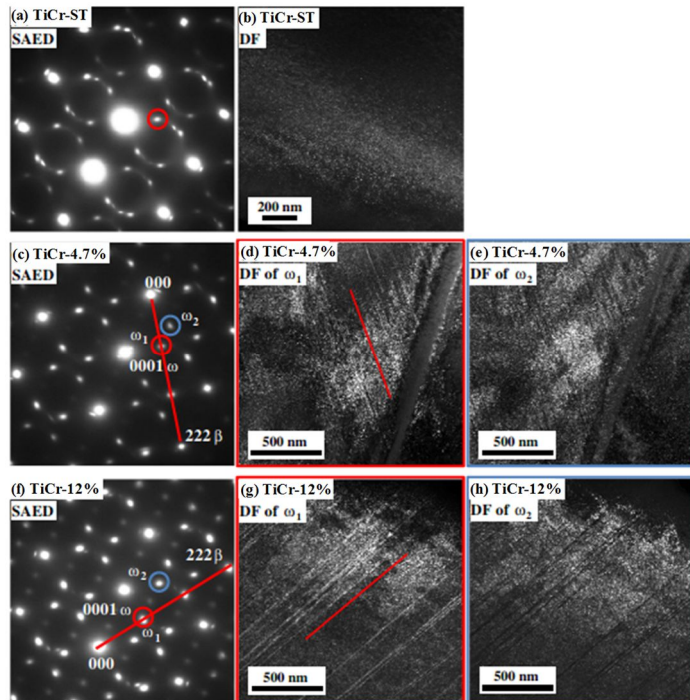


図 2 (a-b)TiCr-ST、(c-e)TiCr-4.7% および (f-h)TiCr-12% の TEM 観察結果: (a) TiCr-ST の SAED パターン、(b) (a) 中の赤色の円で囲んだ スポットから結像した DF 像、(c) TiCr-4.7% の SAED パターン、(d) (c) 中の赤色の円で囲んだ スポットから結像した DF 像、(e) (c) 中の青色の円で囲んだ スポットから結像した DF 像、(f) TiCr-12% の SAED パターン (g) (f) 中の赤色の円で囲んだ スポットから結像した DF 像、(h) (f) 中の青色の円で囲んだ スポットから結像した DF 像

ラメラ組織は、 $[111]$  および $[0001]$  に平行に形成している。この 相の特定方向に沿った優先的な分布は、チタン合金の / 相変態機構として従来から提案されている “lattice collapse mechanism” により / 相変態が生じたことを示唆している。さらに、この  $\omega_1$  からなる細かいラメラ組織以外の 母相内にも、ナノサイズの微細な 粒子が分布しており、その数密度は、TiCr-ST に比べて高い。これらの結果から、ひずみ量 4.7% までの変形中に変形誘起 相変態が生じたと判断される。すなわち、この合金においては、変形誘起 相変態が、塑性変形開始前の弾性応力あるいは弾性ひずみにより引き起こされると考えられる。12% 変形後の SAED パターンでは、TiCr-ST および TiCr-4.7% に比べて著しく強い両バリエントの 相の反射が得られている (図 2 (f))。図 2 (f) 中で赤色および青色の円で囲んだスポットで結像した DF 像から  $\omega_2$  粒子に比べて  $\omega_1$  粒子の数が多いたことがわかる (図 2 (g) と (h))。TiCr-12% においても $[111]$  および $[0001]$  に平行な細かいラメラ組織の形成が認められるが、TiCr-4.7% と比べて微細な 粒子がより高密度に分布している。この結果は、4.7% から 12% へのひずみ量の増加により、さらに多くの変形誘起 相変態が生じたことを示唆している。

図 3 に TiCr-19% (a-d) と TiCr-fractured (e-g) の TEM 観察結果を示す。BF 像および SAED パターンから、これら二つのひずみ量の条件では、 $\{332\}\langle 113\rangle$  双晶の形成が認められる (図 3 (a) および (e))。

TiCr-19% 中の双晶内で得られた SAED パターンにおいて、相の反射は二つのバリエントについて得られているものの、 $\omega_1$  バリエントの反射は、 $\omega_2$  バリエントの反射と比べて、明らかに強いことがわかる (図 3 (b))。図 3 (b) に赤色と青色の円で囲んだ  $\omega_1$  スポットと  $\omega_2$  スポットから結像した DF 像から、 $\omega_1$  粒子は双晶内の

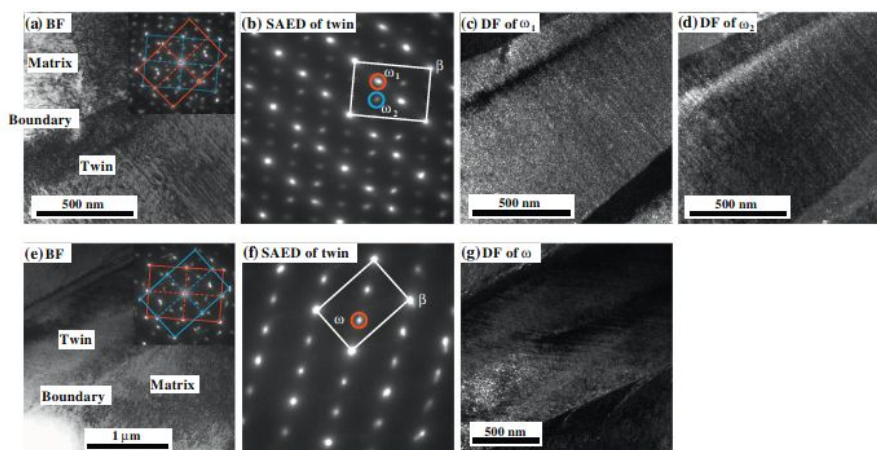


図 3 (a-d) TiCr-19% および (e-g) TiCr-fractured の TEM 観察結果: (a) TiCr-19% の BF 像および双晶境界付近で得られた SAED パターン、(b) (a) 中の双晶内で得られた SAED パターン、(c) (b) 中の赤色の円で囲んだ スポットから結像した DF 像、(d) (b) 中の青色の円で囲んだ スポットから結像した DF 像、(e) TiCr-fractured の BF 像および双晶境界付近で得られた SAED パターン、(f) (e) 中の双晶内で得られた SAED パターン、(g) (f) 中の赤色の円で囲んだ スポットから結像した DF 像

帯状領域以外でほぼ全域に均一に分布しているのに対して、 $\omega_2$  粒子はその帯状領域内を占有していることがわかる (図 3 (c) および (d))。TiCr-fractured 中の双晶内で得られた SAED パターンからは、相に加えて、単一バリエントの 相が同定される (図 4 (f))。すなわち、TiCr-19% が TiCr-fractured に至る途中であることからすると、変形の進行に伴い、バリエントの単一化が生じたといえる。

図 4 に共振式疲労試験機を用いて測定した繰り返し荷重負荷による弾性率変化を示す。最大繰り返し応力が 300MPa の場合、弾性率は、サイクル数の増加に対して、最初はほぼ一定値を維持するが、あるサイクル数を越えると低下していくことがわかる。この弾性率の低下は、繰り返し力学負荷による疲労ダメージ (転位の蓄積や疲労き裂の発生など) によるものと考えられる。これに対して、最大繰り返し応力を 260MPa として試験すると、弾性率はいったん上昇した後、徐々に低下する。この弾性率の上昇は変形誘起 相変態によるものと考えられ、TiCr 合金が繰り返し力学負荷に対して微細組織的・力学特性的に応答したことを示唆している。ただし、繰り返し力学負荷による弾性率変化は、疲労ダメージによる弾性率の低下と変形誘起 相変態による弾性率の上昇との競合関係により決まり、弾性率はいったん上昇するものの、その後は低下すると考えられる。

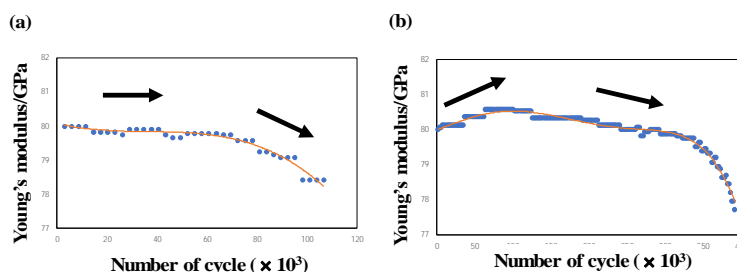


図 4 繰り返し荷重負荷による TiCr 合金の弾性率変化: 最大繰り返し応力 (a) 300MPa および (b) 260MPa での試験結果

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 3件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Q. Li, D. Ma, J. Li, M. Niinomi, M. Nakai, Y. Koizumi, D. Wei, T. Kakeshita, T. Nakano, A. Chiba, K. Zhou and D. Pan	4. 巻 59
2. 論文標題 Low Young's modulus TiNbO with high strength and good plasticity	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Mater. Trans.	6. 最初と最後の頁 858-860
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2320/matertrans.M2018021	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Q. Li, G. Ma, J. Li, M. Niinomi, M. Nakai, Y. Koizumi, D. Wei, T. Kakeshita, T. Nakano, A. Chiba, X. Liu, K. Zhou and D. Pan	4. 巻 54
2. 論文標題 Development of low-Young's modulus Ti-Nb-based alloys with Cr addition	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 J. Mater. Sci.	6. 最初と最後の頁 8675-8683
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s10853-019-03457-0	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 K.K. Liu, M. Niinomi, M. Nakai, K. Cho Ken and H. Fujii	4. 巻 130
2. 論文標題 Deformation-induced $\beta$ -phase transformation in a $\beta$ -type titanium alloy during tensile deformation	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Scripta Mater.	6. 最初と最後の頁 27 ~ 31
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.scriptamat.2016.10.036	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 K. Niwa, T. Akahori, M. Niinomi, T. Hattori and M. Nakai	4. 巻 58
2. 論文標題 Change in mechanical properties of biomechanical Ti-12Cr subjected to heat treatment and surface modification processing	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Mater. Trans.	6. 最初と最後の頁 951 ~ 957
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2320/matertrans.M2016432	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -



1. 著者名 X.L. Zhao, L. Li, M. Niinomi, M. Nakai, D.L. Zhang and C. Suryanarayana	4. 巻 62
2. 論文標題 Metastable Zr-Nb alloys for spinal fixation rods with tunable Young's modulus and low magnetic resonance susceptibility	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Acta Biomater.	6. 最初と最後の頁 372 ~ 384
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.actbio.2017.08.026	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計12件 (うち招待講演 8件 / うち国際学会 5件)

1. 発表者名 M. Nakai, M. Niinomi and H.H. Liu
2. 発表標題 Fatigue strength of beta-type Ti-12Cr alloy under solutionized condition for biomedical applications
3. 学会等名 THERMEC'2018 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 M. Niinomi, Q. Li, T. Akahori, M. Nakai, T. Nakano and D. Pan
2. 発表標題 Role of oxygen in titanium alloys for biomedical applications
3. 学会等名 The 9th International Conference on Advanced Materials Processing (ICAMP-9) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 N.B. Abdullah, M. Nakai, Y. Kawamura, E. Yamamoto and M. Niinomi
2. 発表標題 Influence of Young's modulus difference of titanium alloys on bone healing
3. 学会等名 日本金属学会2018年秋期 (第163回) 大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 仲井正昭
2. 発表標題 生体用 型チタン合金の整形外科用インプラントへの応用
3. 学会等名 第1回日本金属学会第4分野講演会「金属系バイオマテリアルサイエンスの新展開( )」
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 仲井正昭, 山本衛, 新家光雄
2. 発表標題 生体用低弾性率チタン合金の特徴と生体組織との整合性
3. 学会等名 第45回日本臨床バイオメカニクス学会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 N.B. Abdullah, M. Nakai, Y. Kawamura, E. Yamamoto and M. Niinomi
2. 発表標題 Influence of titanium plate fixation on bone formation during healing period
3. 学会等名 日本金属学会2019年春季(第164回)大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 M. Nakai and M. Niinomi
2. 発表標題 Development of metallic biomaterials with changeable elastic modulus using deformation-induced phase transformation
3. 学会等名 Japan-Korea International Symposium on Materials Science and Technology 2017 (JKMST2017) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 M. Nakai
2. 発表標題 Controlling mechanical property by deformation-induced omega phase in biomedical beta-titanium alloys
3. 学会等名 KIM-JIM symposium -Interplay between,phase transformation and deformation in advanced structural materials- (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 M. Nakai
2. 発表標題 Development of biomedical beta-titanium alloys with deformation-induced changeable elastic modulus
3. 学会等名 1st International Symposium on Light Alloys and Composite Materials (ISLAC'18) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 仲井正昭, 新家光雄
2. 発表標題 生体用弾性率可変型チタン合金の化学組成最適化
3. 学会等名 第56回日本生体医工学会大会 (招待講演)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 仲井正昭, 新家光雄
2. 発表標題 生体用チタン合金のヤング率制御と合金開発
3. 学会等名 日本学術振興会鑄物第24委員会鑄造プロセス分科会第19回会議 (招待講演)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 仲井正昭, 新家光雄, 李允碩
2. 発表標題 医療用チタン合金間で生じる摩擦摩耗の特徴
3. 学会等名 日本真空学会機能薄膜部会ナノ構造機能創成専門部会第8回研究会 (招待講演)
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	山本 衛 (Yamamoto Ei)  (00309270)	近畿大学・生物理工学部・准教授  (34419)	