

平成 21 年 5 月 15 日現在

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2006～2008

課題番号：18560690

研究課題名（和文）パルス通電接合法による表面形状制御チタン生体材料の製作

研究課題名（英文）Titanium implant parts with porous structure using pulse electric current bonding

研究代表者

氏 名：大橋 修（Ohashi Osamu）

所 属：新潟大学・自然科学系・教授

研究者番号：00283002

研究成果の概要：生体適合性に富む気孔径、気孔分布をもつ表面形状が制御されたポーラス層を形成するため、①チタンメッシュ材を複数枚積層して気孔径、気孔率の制御法、②メッシュの接合法として、均一に加熱できる拡散接合法と、③接触部のみ選択的に加熱できるパルス通電接合法、さらに、④熱膨張係数の差を利用した接合治具による接合法に着目した。その結果を要約すると下記ようになる。

- ① 複数枚のチタンメッシュ材を積層して形成される気孔径は、使用するチタンメッシュ材の気孔率に依存する。また、複数枚積層した際に形成される気孔率は、積層する際の積層法に関係なく、一定となることが明らかとなった。
- ② 高周波誘導加熱してチタン上にチタンメッシュを複数枚積層して拡散接合した結果、要望されるメッシュ間の接合強さを得る拡散接合条件の選定指針を明らかにするとともに、メッシュ材を平板チタン上へ拡散接合する方法を確立した。
- ③ チタンメッシュを挿入してパルス通電接合する場合、通電電流が接合部の加熱状況に大きく影響する。本方法では、接合部が選択的に加熱されることから、接合部の変形を抑制するため、接合圧力を低く選定する必要がある。
- ④ 熱膨張係数の差を利用して単純に加圧・加熱して接合する方法では、接合温度が 700℃以上でチタンメッシュ材をチタン上に接合できる。また、人工股関節を模擬した円筒形状のチタン上にも積層チタンメッシュ材を接合することができる。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2006 年度	1,200,000	0	1,200,000
2007 年度	1,100,000	330,000	1,430,000
2008 年度	1,100,000	330,000	1,430,000
年度			
年度			
総計	3,400,000	660,000	4,060,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：材料工学 ・ 材料加工・処理

キーワード：インプラント材、チタン、多孔質材、拡散接合、通電接合

1. 研究開始当初の背景

大腿骨などの人工股関節インプラント材は、生体親和性が求められている。高い生体親和性確保のため、①材質的、②形状的な観点から検討がなされている。

材質的には、チタンが生体補強用材料として注目され、人工股関節のステムの他、歯科用または整形外科用インプラント材料として実用化され、新規材料の開発が活発である。

従来、人工股関節ステムを固定する際には、チタン製ステムを骨の中に挿入して、骨セメントを用いて固定していた。しかし、長期の使用でゆるみが生じ、骨セメントの生体への影響も懸念されている。そこで、形状的な観点から、人工股関節の骨への固定性を高めるため、人工股関節ステムの表面を部分的にポーラス化して、その気孔（空洞）の中へ骨を成長させ、機械的に固定するインター・ロッキング方法が提案されている。

そのポーラス層の形成方法として、ビーズやファイバーの焼結法、プラズマ溶射法等が試みられている。プラズマ溶射法では、数百 μm と大きな気孔を持つ層の形成は困難である。ビーズやファイバーの焼結法は大きな気孔形成に有利であるが、表面に形成される気孔の形状と分布の制御が困難である。そこで、ポーラス層での気孔の形状と分布の制御が容易なプロセスの開発が望まれている。

2. 研究の目的

そこで、本研究では生体適合性に富む気孔径気孔分布をもつポーラス層を形成するため、下記の点に着目し、表面形状が制御された人工股関節インプラント材作製を目的とした。

- ① Ti メッシュ材を複数枚積層して、気孔径、気孔率を制御。
- ② メッシュの接合法として、単純に加圧・加熱する拡散接合法

- ③ 接合界面を選択的に加熱できるパルス接合法

- ④ さらに人工股関節上にチタンメッシュを積層接合する方法として、熱膨張係数の差を利用した接合方法。

3. 研究の方法

3.1 気孔の制御法

Ti メッシュ材を積層した際、形成される気孔の分布、気孔の形状について検討する。市販の各種のサイズの孔を持つ Ti メッシュ材を積層する際、メッシュ材の積層方法（回転角度）と貫通孔との関係から検討した。Ti メッシュ材は、厚さ 0.09mm の純 Ti（1 種）のメッシュ材（玉川ハイテック製、ハイパーメッシュ、マイクロ・エキスパンドメタル）である。

図 1 は、Ti メッシュ材の走査型電子顕微鏡写真である。この Ti メッシュ材を積層して、回転角度を変化させて、貫通率（貫通した孔の面積割合）、気孔径等を測定した。

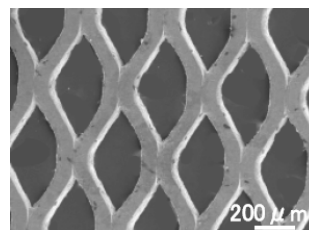


図 1 使用したチタンメッシュ材

3.2 単純に加圧・加熱する拡散接合法

Ti メッシュ材を積層して拡散接合した際の、接合条件因子(温度、圧力、積層枚数)と接合部特性(引張強さ、接合破面、断面組織、変形)との関係から、Ti メッシュ材積層拡散接合によるインプラントの作製の可能性について検討する。

Ti メッシュ材間の接合強さを測定するため、長さ 30mm の純 Ti の丸棒間に Ti メッシュ材を挟んだ継手を作製した。接合に際しては、まず接合試料をアセトン中で 10min 超音波洗浄した。洗浄した接合試料の接合面を突き合わせて拡散接合装置内に設置後、常温で上下から加圧し、引き続き分子ターボポンプで排気した。雰囲気圧力が $5.0 \times 10^3 \text{Pa}$ 以下に到達後、所定温度まで高周波誘導加熱した。昇温速度は $100\text{-}200 \text{ }^\circ\text{C}/\text{min}$ であ

る。温度測定に際しては、接合面から 3mm 離れた丸棒上に R 型熱電対をスポット溶接した。一定温度での保持時間を接合時間とした。

3.3 接合界面を選択的に加熱できる

パルス接合法

接触界面を選択的に加熱できることから新しい接合法として注目されているパルス通電接合法を適用した。3.2 と同じ形状の継手をパルス通電接合法で作製した。使用した装置は、エスエスアロイ製 Plasman である。

接合に際しては、雰囲気圧力を 5.0×10^{-3} Pa 以下となつてから、通電して加熱した。通電電流を各種変化させて、加熱速度を変化させ、その加熱速度が接合状況へどのように影響するか検討した。接合部の評価は、3.2 と同じようにおこなつた。

3.4 熱膨張係数の差を利用した接合法

3.2 と 3.3 で、平板上のチタンに Ti メッシュ材を接合することが可能となつた。複雑な形状の人工股関節上にチタンメッシュを積層接合する方法として、熱膨張係数の差を利用した接合治具を使った方法について検討した。

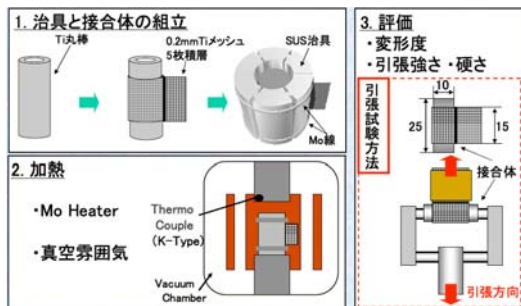


図2 熱膨張係数の差を利用した接合法の組み立て法と加熱、評価法

図2には、本法の治具と接合体の組み立て法、加熱法、評価法を示す。組み立てに際しては、チタン丸棒状上に Ti メッシュ材を巻き付け、その上に SUS304 ステンレス鋼の治具を配置して、モリブデン線を用いて常温で固定する。このように組み立てた後、加熱すると、Ti より熱膨張係数の大きい SUS304 ステンレス鋼が大きく膨張する。一番外側のモリブデンの熱膨張係数が小さく膨張しないことから、チタンメッシュ材へ変形が集中することになる。メッシュの接合強さの測定に際しては、専用の治具を用いて引張試験に供した。

4. 研究成果

4.1 気孔の制御法

回転角度 0° では、貫通率にバラツキがあ

る。しかし、回転角度 0° 以外では、貫通率は一定で、回転角度の貫通率への影響はない。Ti メッシュ材を積層したときの断面の模式図を図3に示す。気孔率が60%、平均サイズが $40 \mu\text{m}$ の Ti メッシュ材を積層すると、回転角度が 0° に制御しない限り、連通孔は36%、その平均サイズは $180 \sim 280 \mu\text{m}$ である。このように、必要な孔のサイズが分かれば、Ti メッシュ材の選定で作製出来ることが明らかとなった。

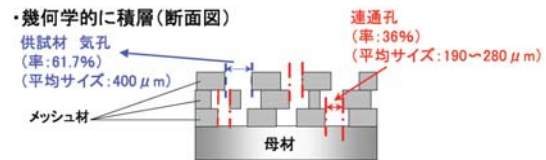


図3 Ti メッシュ材の積層時の孔の断面形状図

4.2 単純に加圧・加熱する拡散接合法

丸棒とメッシュ材との接合強さを調べるため、丸棒間にメッシュ材を挟んで接合した。

メッシュ材挿入時には、直接接合時と比較して、接合面積が減少する。そこで、接合箇所での接合強さについて検討するため、メッシュ材挿入時、幾何学的に重なる見かけの接合面積当たりの強さで整理し、その結果を図4に示す。

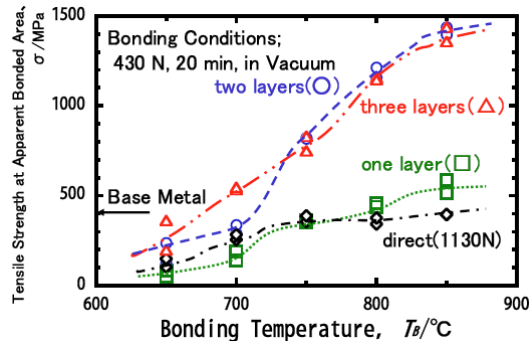


図4 Tiメッシュ材を0、1、2、3層挟んだ際の継手の強さと接合温度との関係

メッシュ材1枚挿入時のメッシュ材と丸棒の見かけの接合面積は、丸棒の面積の38%、メッシュ材2枚、3枚挿入時、メッシュ材間の見かけの接合面積は、丸棒面積の12%となる。メッシュ材を1枚挿入時と直接接合時とでは、見かけの接合面積当たりの接合強さにはあまり差がなく、接合温度の上昇とともに強さが上昇し、接合温度が 800°C になると母材の強さ程度に達している。メッシュ材2枚、3枚挿入時の見かけの接合面積当たりの強さは、1枚挿入時の結果と比較して、2倍近く

大きくなっている。

見かけの接合面積当たりの接合強さが、母材以上となる原因を調べるため、メッシュ材を3枚挿入時の接合部破面と接合部断面を観察した。接合条件850℃、430Nでは、メッシュ材が大きく変形するためである。

接合によるメッシュ材の変形を抑制する観点から接合荷重は50Nと低い方がよい。

次に、具体的なインプラント材を想定して、10枚のメッシュ材を丸棒上に積層拡散接合した。図5には、700℃、750℃、850℃（接合荷重50N）での接合表面の走査型電子顕微鏡観察結果と、その接合部の断面の光学顕微鏡観察結果を示す。

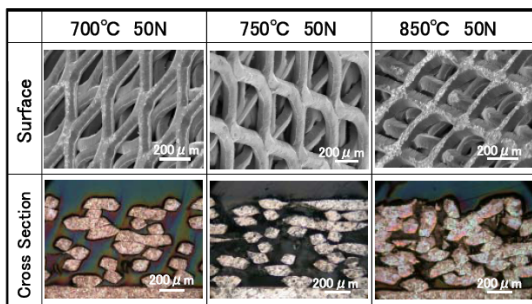


図5 Tiメッシュ材を10枚積層接合時の破面写真と断面写真

接合温度が高い接合条件では、メッシュ材が変形し、上下のメッシュ材の空孔部へ塑性流動している。しかし、接合温度が低い接合条件では、接合部の表面と断面の観察から、メッシュ材の塑性変形量は少ないことが分かる。骨とインプラント材のせん断強さについては、成犬大腿骨で0.98-6.9MPaの値が得られ、安全率(2-3)を考慮して、14-21MPaの値が必要と報告されている。

Tiメッシュ材を積層して拡散接合する際、接合条件750℃、50Nでは、メッシュ材の塑性変形量も少なく、接合強さは25MPa得られている。本接合条件では要求される接合部の強さを満足していると考えられる。

4.3 接合界面を選択的に加熱できる

パルス接合法

パルス通電接合で加熱速度の影響について検討した。

最高加熱温度での保持時間をゼロとして接合して、この最高加熱温度を接合温度とした。各種の加熱速度、接合温度で継手を作製して、その接合強さと加熱速度の関係を求めた。図6は、その結果で、加熱速度の

上昇とともに、メッシュの接合強さが上昇している。また、接合による長さの変化量も増加した。

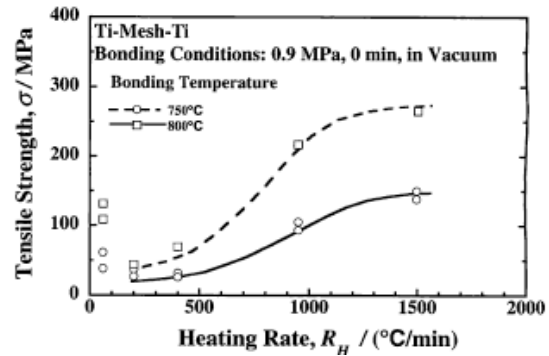


図6 接合温度750℃と800℃での継手強さと加熱速度の関係

この加熱速度の変形への影響を明らかにするため、750℃での接合継手の断面の組織観察を行った。図7の(a)には、加熱速度60℃/minの組織写真と、(b)には1500℃/minの組織写真を示す。

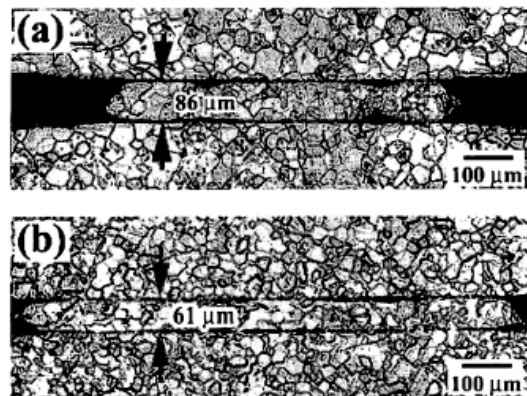


図7 チタンメッシュ材を挟んだ接合部の断面組織 (a)加熱速度60℃/min、(b)加熱速度1500℃/min

接合前のメッシュの厚さは93μmである。この断面観察から、加熱速度が大きくなると、チタンメッシュに変形が集中することが明らかとなった。

次に、加熱速度の上昇とともにメッシュの変形が増加する理由を明らかにする目的で、メッシュ近傍の温度分布を測定した。

図8は、加熱速度が60℃/min、950℃/minの時のメッシュの温度(T_M)とチタンメッシュ材から約1mm離れたチタン丸棒の母材部の温度(T_C)を示す。加熱速度が60℃/minの場合、メッシュの温度(T_M)とチタンメッシュ材から約1mm離れたチタン丸棒の母材部の温度(T_C)との温度差は全接合過程中30~50℃で、メッシュの温度(T_M)の温度が高

い。しかしながら、加熱速度が 950°C/min の場合、メッシュの温度 (T_M) は、特異な温度変化を示す。加熱当初メッシュの温度 (T_M) は高いが、加熱時間の経過とともに、その温度は低下し、加熱時間が長くなると上昇し始める。

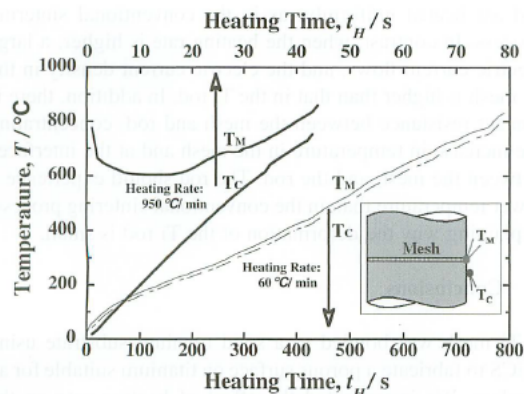


図 8 加熱速度が 60°C/min, 950°C/min の時の、メッシュの温度 (T_M) とチタンメッシュ材から約 1mm 離れたチタン丸棒の母材部の温度 (T_C)

このメッシュ挿入部の選択的に高温に加熱される現象は、チタンの接合部近傍の表面の酸化現象からも確認できる。

チタンは加熱雰囲気 1Pa では酸化する。この雰囲気では、加熱温度が 700°C 以上では酸化して青色に変色する。このチタン材料の酸化状態から加熱状態を検討する。

図 9 は、700°C 以上に加熱され青く観察された領域の長さ L と、加熱速度との関係を示す。

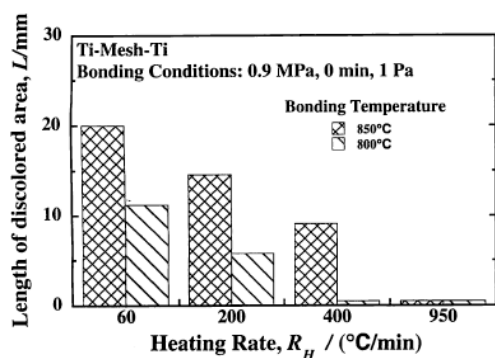


図 9 700°C 以上に加熱された領域と加熱速度の関係

このように、加熱速度の増加はメッシュ挿入部の選択的溫度上昇を招くことになる。

以上の結果、チタンメッシュを挿入してパルス通電接合する場合、通電電流が接合部の加熱状況に大きく影響する。本方法では、接合部が選択的に加熱されることから、接合部の変形を抑制するため、接合圧力を低く選定する必要があることが明らかとなった。

4.4 熱膨張係数の差を利用した接合法

熱膨張係数の大きな材料を外側に配置して、チタンメッシュ材に変形が集中するようにした接合治具を利用して接合法で、その方法の接合条件の選定指針を確立する事を目的とした。

チタン製人工股関節の上にチタン製メッシュを積層する目的で、図 3 に示したように、そのチタン製メッシュ積層の外側に SUS304 ステンレス鋼治具を配置し、さらにはその外側をモリブデン線で締め付けて固定する。このように組み立てた接合体を 700~900°C で加熱すると、ステンレス鋼が膨張して、チタンメッシュへの加圧力が発生する。

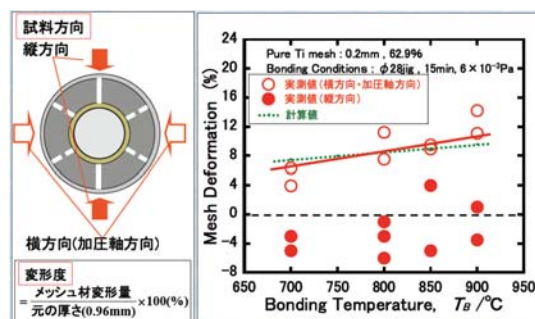


図 10 場所による接合体の変形度の差

図 10 に示すように、外径 28 ミリのステンレス鋼の治具を用いて、直径 10 ミリのチタン丸棒上にチタン製メッシュを積層して、各種の温度に加熱した結果、接合温度の上昇とともに、接合強さが増加する。しかし、二つ割りの治具を使用することでの加圧力の不均一性から、接合領域も不均一である。

接合温度 900°C では、メッシュ材同士の接合強さは、受入メッシュ材の 1/3 以上に達する。

接合部の改善策として、接合部の変形を促進する目的で、接合体を複数回加熱した。加熱回数の増加とともに、メッシュ積層体での変形が増加し、接合強さは、加熱回数とともに増加する。

また、接合の改善策として、直径が 50 mm のステンレス鋼の接合ジグの使用について、検討した。

図 11 は、接合治具のサイズの影響を示す。外径 50mm のステンレス鋼治具の使用で、メッシュの変形は 12% から 20% へ増加し、接合

部の強さはチタンメッシュ母材内で破断した。接合部の断面観察からチタンメッシュの大きな形状変化なくして接合体を作製でき、その接合体の断面観察で接合部を確認した。また、破断部の観察から、ディンプルの形成を確認した。さらに、断面の硬さ分布測定から、接合による硬さの増加は観察されなかった。接合に際しては、接合温度 850℃で、20%の変形の付与で母材並の強さに達する。

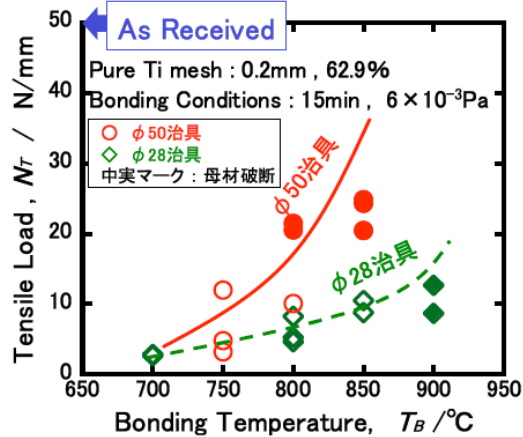


図 11 接合治具のサイズの影響

図 12 に示すような、人工股関節を模擬した、卵型断面形状を有する円筒丸棒上への、チタンメッシュ材の接合を試みた。

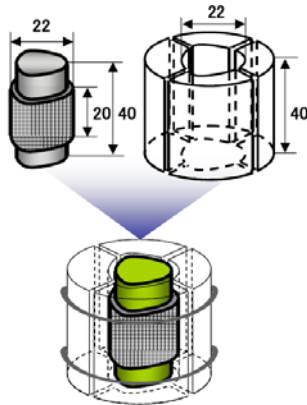


図 12 人工股関節を模擬した卵型断面形状を有する円筒丸棒上への、チタンメッシュ材の接合

チタンメッシュに 20%の変形を付与するステンレス鋼の接合治具を設計して、チタンメッシュの接合を試みた結果、計算から予測される変形を付与することができた。

この接合部の強さは、チタンメッシュ内破断した。そして、断面観察からも、メッシュの穴の形状変化を伴うことなく、接合

できた。

以上の結果、熱膨張係数の差を利用して接合する方法で、人工股関節上にチタンメッシュを積層できることが明らかとなった。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 2 件)

1)長田圭司、落合清秀、太橋修:インプラント用 Ti メッシュ材の拡散接合、軽金属溶接 Vol. 44(2006), No.9, 415-420

2)Airu Wang and Osamu Ohashi : Titanium Mesh / Rod Joined by Pulse Electric Current Sintering : Effect of Heating Rate, Materials Trans. Vol.47(2006), No.9, 2348-2352

[学会発表] (計 1 件)

1)小島健司、落合清秀、太橋修:熱膨張を利用したインプラント用メッシュ材の拡散接合、日本金属学会秋期全国大会概要集、2007, 415

[その他]

ホームページ

<http://www.gs.niigata-u.ac.jp/~mps/index.htm>

6. 研究組織

(1)研究代表者

太橋 修 (Ohashi Osamu)

所属 新潟大学・自然科学系・教授

研究者番号 : 00283002

(2)研究分担者

田邊 裕治 (Tanabe Yuuji)

所属 新潟大学・自然科学系・教授

研究者番号 : 60143020