

令和 4 年 5 月 27 日現在

機関番号：32621

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K04096

研究課題名(和文) 3D造形関節運動器の疲労強度向上を目指した組織・結晶構造の変態プロセスの構築

研究課題名(英文) 3D modeling construction of transformation process of microstructure / crystal structure aiming at improvement of fatigue strength of joint locomotorium

研究代表者

久森 紀之 (Hisamori, Noriyuki)

上智大学・理工学部・教授

研究者番号：80317510

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：患者個々の関節運動器の骨格や症状等に合わせた高生体適合性カスタムメイドインプラントが求められている。現在の整形外科用3D造形関節運動器デバイスは、造形時の残留欠陥が疲労強度を著しく低下させるために実用範囲が極めて限定されている。本研究では、チタン合金の3D造形カスタム関節運動器デバイスを直接造形し、短時間高周波焼入れとショットピーニング処理で組織のナノ結晶化と結晶相変態による耐疲労強度化プロセスの構築を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

カスタムメイド医療を目指す金属粉末積層造形技術の導入は、基本機能を維持しつつ、患者個々の骨形状に見合う性能及び構造となるよう最適化されたヒトに優しいインプラント技術である。積層造形は低侵襲手術、早期リハビリ、長寿命化インプラント、再手術の減少、簡易手術と成績向上等、多くの患者にメリットがある。本研究ではTi-6Al-4V合金を対象に、電子ビーム積層造形法で造形・創製した。そして、短時間高周波焼入れとショットピーニング処理で残留欠陥の除去及び更なる疲労強度の向上を目指した。すなわち、造形材の安心安全を担保可能であることを検証するための疲労強度・寿命評価を実施し、そのメカニズムを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：Custom-made implants tailored to the skeleton and symptoms of individual patient joints are required. In current 3D orthopedic 3D sculptural joint devices, residual defects during sculpting significantly reduce fatigue strength. Therefore, the practical range is limited. In this study, we directly modeled a titanium alloy 3D modeling custom articulated locomotor device. Then, a fatigue-resistant strengthening process was constructed by nano-crystallization of the structure and crystal phase transformation by induction hardening for a short time and shot peening treatment.

研究分野：環境材料強度学

キーワード：チタン合金 積層造形 疲労特性 組織・微細構造 変態プロセス 関節運動器

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

関節運動器インプラントを必要とする患者(ロコモティブシンドローム(ロコモ);運動器症候群)の急速な増加に伴い、安全性等に関する基本的機能を十分に満足しつつ、患者個々の骨格や骨質、症状等に合わせたカスタムメイドインプラントが必要とされている。

カスタムインプラントデバイスの製造は、試作品を素早く作るラピッドプロトタイピングを応用した金属積層造形(Additive Manufacturing)(以下、3D造形と称する)が期待されている。材料学的観点からは、チタン合金(Ti-6Al-4V)を使用した股・膝関節の荷重支持部での適用が期待されている。しかしながら、その適用は頭蓋骨プレートに留まっている。その理由は、造形材に残留する原料粉末の未溶融部や粉末に埋包されたガス気泡の存在が、従来材(鑄造や鍛造で製造された素材)の疲労強度に比べて半分程度まで低下するためである。したがって、内在欠陥を含むデバイスの適用は、欠陥が疲労強度に関与しにくい圧縮下、例えば、関節摺動部のソケットに限定されている。すなわち、3D造形カスタムインプラントデバイスの曲げやねじり荷重下への適用には、残留欠陥の除去あるいは、これを上回る疲労強度向上の手法・技術の提案と構築が求められている。

金属系医療デバイスの骨組織との安定な固定や結合は極めて困難であり、3D造形材も同様である。現状の骨固定は、高分子骨セメントを用いているが、血圧低下による死亡症例が後を絶たないことから、骨の成分と類似するアパタイトをプラズマ溶射で被覆した非セメント固定になりつつある。しかしながら、高温成膜によるアパタイト結晶の不安定化、アパタイト層のはく離が弛み、摩耗、腐食、疲労等の二次損傷も数多く報告されている。骨との直接結合の観点から骨伝導能を付与するアパタイトの適用は望ましい一方、明確な界面の存在は破損の問題がある。デバイス表面に体液との反応でアパタイトを発現させて骨結合させるアルカリ加熱チタンは、アパタイト核の発現と成長までのタイムラグが初期固定に影響を及ぼしている。つまり、早期に骨結合する表面機能の創製を可能とする「問い」に対する技術の提案と構築が求められている。

### 2. 研究の目的

患者個々の関節運動器の骨格や症状等に合わせた高生体適合性カスタムメイドインプラントが求められている。現在の整形外科用3D造形関節運動器デバイスは、造形時の残留欠陥が疲労強度を著しく低下させるために実用範囲が極めて限定されている。加えて、骨伝導能に乏しい金属インプラントには、骨と協調・融合する機能性の付与が不可欠であり、造形材でその機能の検討や効果の検証はなされていない。

本研究では、チタン合金の3D造形カスタム関節運動器デバイスを3D CADデータから直接造形し、短時間高周波焼入れとショットピーニング処理で組織のナノ結晶化と結晶相変態による耐疲労強度化プロセスの確立及びプラズマ溶射法による骨伝導能付与技術の一体化創製技術の構築を目的とする。

### 3. 研究の方法

#### (1) 3D積層造形

電子ビーム積層造形機(Arcam社製A2-EBM System)(既設)を用いて人工股・膝関節の3D-CADデータを基に、Ti-6Al-4V合金の造形を行う。ここでは、カスタムメイドを念頭にした造形、すなわち、一部分が細かったり、太かったりなど既存品では対応できない症例を想定した造形を行う。加えて、既存技術を生かした内部は緻密、一部表面はジオメトリなポーラス構造とし、弾性率の低減を行う。すなわち、長期埋入で生じるstress shieldingの抑制を視野に入れる。また、特殊なパターンでカスタム化するため、予め造形の判断が必要である。そのために必要な簡易モデル材の創製に、樹脂等で成形可能な造形装置を利用する。

#### (2) 短時間高周波焼入れによる残留欠陥の消滅と組織構造の微細化

短時間高周波焼入れによるマルテンサイト変態が組織の微細化に寄与することで、造形欠陥の除去あるいは減少による高力学化の向上を目指す。とくに、渦電流が欠陥周りに集合することで、組織の再溶融・再凝固化が作動し、残留欠陥が除去・消滅するプロセスの構築と、その機序を明らかにする。空間的・時間的高倍率な微細組織の評価は、X線CT、レーザ顕微鏡、FE-SEM(EDX)、AFMを用いた詳細な観察及び、マルテンサイト変態によるミクロ結晶方位分布をEBSDから明らかにする。

(3) SPを用いた塑性ひずみによる残留欠陥の消滅(二段階処理)と圧縮残留応力付与による耐疲労強度の向上)短時間高周波焼入れした造形材で消滅しきれない欠陥に対して、SPによる塑性ひずみで残留欠陥を完全に消滅させること及び、マルテンサイト変態による更なる組織の細粒化を誘導する二段階処理プロセスを構築する。同時に圧縮残留応力付与による硬さと強度向上が耐疲労特性を高める高力学化の構築も範疇とし、その効果を曲げやねじり疲労試験から明らかにする。

#### (4) SP処理表面凹凸性状へのプラズマ溶射による骨伝導能付与

SP処理で形成される微細な凹凸形状(図1)をアパタイトの癒着の足場に利用する。すなわ

ち、SP した凹凸面にプラズマ溶射でアパタイトを核付け（極微量定着）し、明確な界面が存在しない骨伝導能付与を行う。表面のイオン濃度を高める表面デザインの観点からも、凹凸性状は有効に作用する。また、二段階処理で創製した組織や残留応力が溶射熱で解放しないようアパタイト粒子を高温溶融させて溶射を行う。ここでは、核付したアパタイトの成長過程を空間的・時間的高倍率観察と結晶構造解析による存在状態を通じて、アパタイトの析出反応に関する高機能メカニズムと、骨伝導能に及ぼす表面デザインの役割と効果を明らかにする。

#### 4. 研究成果

##### (1) 研究の主な成果

##### 結果と考察

図 1 に高周波焼入れ処理前(a)と後(b)の表面および、高周波焼入れとショットピーニング処理した複合改質材の断面(c)における EBSD による結晶粒径と結晶構造を観察・同定した結果を示す。図より、(a)では板状の相組織と、相組織との粒界に相組織が観察される。これに対して高周波焼入れを施した組織(b)は、高周波焼入れ処理に起因する微細なマルテンサイト(  $\alpha'$  )相組織が観察される。これは、高周波焼入れ処理前の相組織の一部が  $\alpha'$  相に変態したと考えられる。加えて、大きな板状の相組織と微細な相組織が観察される。複合改質した断面組織観察(c)より、表面近傍の組織が深さ方向に崩れている様相が観察される。加えて、表面近傍の微細組織は、高周波焼入れ後の大きな板状の相組織の一部が微細化されている様相が観察される。これらのことは、無数のショット球を被加工材(Ti-6Al-4V)表面に衝突させることによる塑性変形の結果と考えられる。

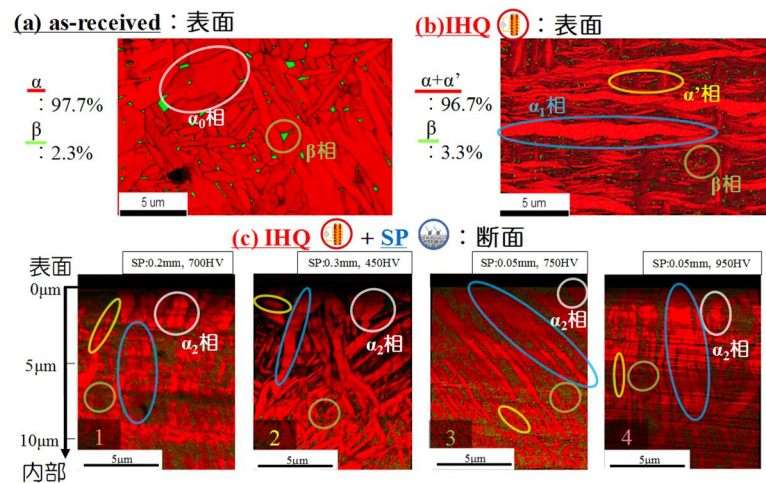


図 1 結晶構造の同定：表面・断面（EBSD）

図 2 に接触式表面粗さ計により測定した表面粗さの結果を示す。図より、平均表面粗さ (Ra) は複合処理することで高周波焼入れ材に比べて平滑化していることがわかる。なかでも、ショット材の粒径が小さい試験片が優位であることがわかる。これは、ショット材の粒径が小さいほど、被加工物表面(Ti-6Al-4V)の凸部を塑性加工による押し潰しとバリ取りの効果により、結果として平滑化したと考えられる。

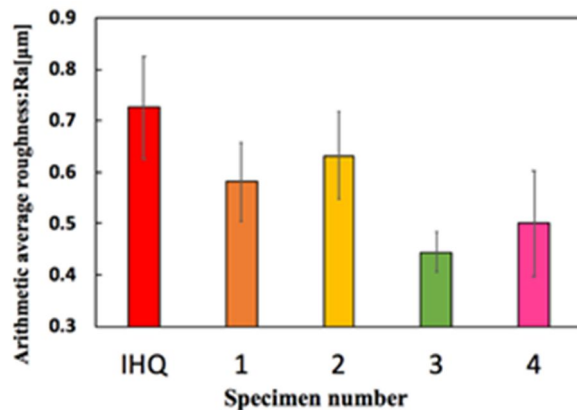


図 2 接触式表面粗さ計により測定した表面粗さの結果

3 にビッカース硬度計による深さ方向の硬さの結果を示す。同より、高周波焼入れを施すことで未処理材に比べて 50HV 程度向上した。このことは、高周波熱処理による組織微細化による粒界の増加が転位移動を抑制する効果が寄与していると考えられる。さらに SP 加工を施す複合処理を行うことで硬さは顕著に向上することがわかる。加えて、硬さの向上は内部方向に 50 μm 程度まで有効であることがわかる。なかでも、ショット材の硬さが高く、粒径の小さい試験片が優位であることがわかった。このことは、ショットピーニング処理による塑性加工と組織微細化が硬さの向上に寄与すると考えられる。すなわち、複合改質処理は硬さの向上に大いに効果を発揮する手法であることを示唆している。つまり、疲労特性の向上が期待できると考えられ、複合改質処理の有用性が明らかになった。

図 4 に高周波焼入れ材のねじり疲労特性結果を示す。都合上、ショットピーニング処理した複合処理材の結果は割愛するが、EBM 材の疲労特性の低下は、積層造形時に残留する欠陥が要因であることは同図より明らかである。これら疲労特性を改善するために、EBM 材に表面改質として高周波焼入れ処理を施した。同材のねじり疲労試験結果を図 4 に示す。図より、高周波焼入れ処理を施した EBM 材のねじり疲労強度は、未処理の EBM 材よりも高いことがわかる。また、鍛造材についても同様の結果が示された。

これらより、EBM 材および鍛造材への高周波焼入れ処理による表面改質は、ねじり疲労特性の向上に有効であることが示された。

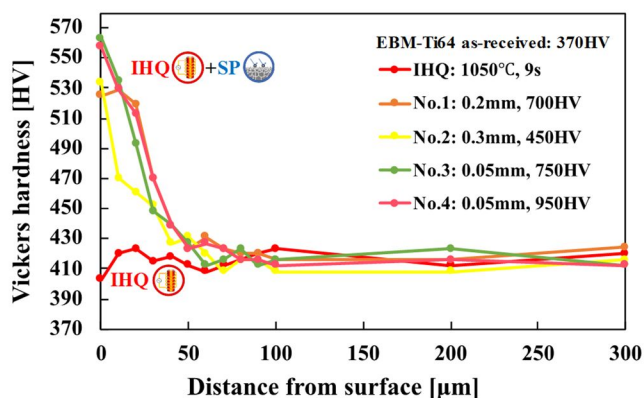


図 3 硬さ試験結果

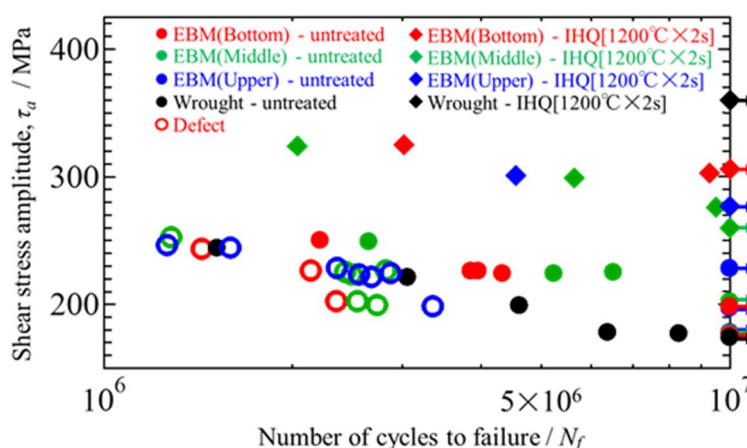


図 4 高周波焼入れ材のねじり疲労特性結果

#### <引用文献>

荒木悠哉, 久森紀之, 水野悠太, 小林祐次, 塚原真宏, 三阪佳孝, 複合改質した電子ビーム積層 Ti-6Al-4V 合金の各種特性評価, 日本材料学会第 71 期通常総会・学術講演会ならびに各種併設行事創立 70 周年記念事業, 523, 2022

#### (2) 得られた成果の国内外における位置づけとインパクト

3D 造形を短時間で可能とする積層造形技術は、製品の市場寿命の短縮化や消費者ニーズの多様化から注目されている。国内では 2014 年経産省の委託事業として、技術研究組合次世代 3D 積層造形技術総合開発機構の設立、2015 年内閣府主導のもと、戦略的イノベーション創造プログラムを阪大が実施している。いずれも、競争力のある新規ものづくり産業の創出を目指している。市場では、3D 造形カスタム頭蓋骨が販売されているが、整形外科分野では国内外を問わず実用されていない。

ロコモの増加に伴い人工関節手術は年間 15 万件、症例も多様化している。整形外科学会ではカスタムインプラントの早期確立を求めている。日本人に適した国産インプラントの創製を 3D 造形技術で構築し、世界に誇れる日本のものづくり産業の先導は、社会への波及効果が期待されている。

一方、造形時の残留欠陥が疲労強度を顕著に低下させる現象を改善・解決せずに、運動器への応用は困難である。厚労省では、造形物の組織が変化する温度以上でホットプレス(熱間等方加圧)処理を推奨している。残留欠陥の除去を目的とした既存技術の必要工程である一方、従来材と異なる組織・結晶構造を有し、処理の効率化やコストが負担である。一方、本研究においては、処理の効率化とコスト負担を意識した、短時間熱処理プロセスである高周波焼入れと、ショットピーニング処理による二段階処理プロセスでこれらとは差別化されて、疲労強度向上の観点からはインパクトが大きいと考えている。

チタン合金への骨伝導能付与技術は、プラズマ溶射法によるアパタイト被膜と小久保らが 1996 年に報告したアルカリ加熱法が主流である。前者は使用中のはく離、後者は骨結合の遅延が課題である。いずれも骨との結合機能は不可欠であり、早期かつ長期間の結合安定性が求められる。本研究は、特許出願した短時間高周波加熱処理で残留欠陥を再溶融凝固させる先導的提案をし、SP 処理で更なる造形欠陥の除去と骨伝導機能を付与する表面性状を同時に創製する本申請は独創的なアイデアを提案したものであったが、疲労強度向上のプロセス解明に時間を

要し、本研究課題の遂行までには至らなかった。しかしながら、上述した二段階処理プロセスはチタン合金のみならず、医療用デバイスとして適用されている Co-Cr 合金にも適用できることを確認した。すなわち、本処理プロセスの多様性と有効性を構築できたことは国内外の研究動向に比べて大きな先導的なインパクトを有するものである。

### (3) 今後の展望などの点

本研究で当初立案したチタン合金への骨伝導能付与技術については十分な成果が得られなかったことから、これらについては今後の研究遂行として実施することを検討している。すなわち、ショットピーニング処理で得られる表面凹凸性状をアパタイト核が強固に癒着する骨伝導機能の足場へ着想したい。具体的には、プラズマ溶射でショットピーニング処理面にアパタイトを核付けする。チタン合金の 3D 造形カスタム関節運動器デバイスを骨形状 3D CAD データから直接造形し、短時間高周波焼入れとショットピーニング処理との二段階処理でナノ結晶化と結晶相変態による耐疲労強度化プロセスを確立し、ショットピーニング処理へのプラズマ溶射による骨伝導能付与技術の一体化創製技術を構築が展望される。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 2件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 久森紀之
2. 発表標題 電子ビーム積層造形法によるチタン合金の微細構造と疲労特性の関係から見える実用化への課題
3. 学会等名 一般社団法人溶接協会（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 久森紀之
2. 発表標題 3D プリンターを活用した 生体・医療材料への応用と課題
3. 学会等名 日本材料学会生体材料部門委員会（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 荒木悠哉，久森紀之，水野悠太，小林祐次，塚原真宏，三阪佳孝
2. 発表標題 複合改質した電子ビーム積層Ti-6Al-4V合金の各種特性評価
3. 学会等名 日本材料学会
4. 発表年 2022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
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------