

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年 6月 1日現在

機関番号：32621

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2010～2012

課題番号：22760084

研究課題名（和文）レーザ溶融積層造形による医療用チタン合金の創製と骨伝導能付与技術の構築

研究課題名（英文）Production and bone conduction ability grant technology of medical Ti-6Al-4V shaped by laser sintering

研究代表者

久森 紀之（HISAMORI NORIYUKI）

上智大学・理工学部・准教授

研究者番号：80317510

研究成果の概要（和文）：高齢化社会を迎えインプラントの需要が増加している。量産品のインプラントは、患者によっては形状がフィットしないことや、うまく動作しないことがある。そこで、オーダーメイドの製品が必要とされている。患者の医療画像から直接 3D-CAD データに形状情報を転送し、造形するラピッドプロトタイピングに着目した。すなわち、素材粉末を層状に敷き詰め、高出力のレーザビームで直接焼結して造形物を製造する手法をインプラントに応用した。そして、材料表面に最適な凹溝空間を設け、熱処理により骨を引き寄せ、協調し融合する骨伝導能の付与を試みた。加えて、凹溝空間が疲労特性へ及ぼす影響を評価した。

研究成果の概要（英文）：Currently almost all titanium products are mass produced goods that are manufactured using CNC working machine for casting material and forging material. Mass products, however, have the same shape; hence, some patients do not fit in well with them and also they sometimes do not work well. On the other hand, rapid-prototyping has developed as a means, raising expectations for using it to make not only prototype but also actual products and providing various products more quickly. Metal powder layered method is the way of sculpting by laminating metallic powder in rapid-prototyping. Using Metal powder layered method one can manufacture titanium with 3D data and modeling devices if you do not have a mold. There are two main methods of Metal powder layered method: electron beam melting method and laser beam sintering method. In recent years, it is also reported that there is the problem of descent of fatigue property whose cause seems to be defect. It would be important to assess endurance strength for the future because security is absolutely imperative for practical use of implants. In this study, we have assessed and explored the fatigue property of titanium alloys that are manufactured by Metal powder layered method.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	2,000,000	600,000	2,600,000
2011年度	600,000	180,000	780,000
2012年度	600,000	180,000	780,000
総計	3,200,000	960,000	4,160,000

研究分野：機械工学

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：生体材料，医療・福祉，解析・評価，機械材料・材料力学，材料加工・処理，チタン合金，アパタイトコーティング，微細構造

1. 研究開始当初の背景

整形外科インプラントを必要とする患者の急速な増加に伴い、安全性などに関する基本的な機能を十分に満足しつつ、さらに患者個々の骨格や症状等に合わせたカスタムメイドが求められている。

材料学的観点からは、生体用チタン合金 (Ti-6Al-4V) の弾性率は約 110GPa であり、骨の 10-30GPa に比べてかなり高い。そのため、インプラントした周囲の骨は生理的荷重の遮蔽 (stress shielding) を受け、破骨細胞による骨強度の低下・骨折が生じる。これを改善する手法として、骨の弾性率により近い低弾性チタン合金の適用が望まれている。しかし、同材の強度 (疲労強度) の低さが問題視されている。

一方、体内に埋入する金属系生体材料と骨組織との安定な固定や結合は極めて困難である。現状では、高分子骨セメントを用いて材料を固定しているが、血圧低下による死亡症例が後を絶たない。また、骨の主成分であるアパタイトをプラズマ溶射で被覆した素材は、高温成膜によるアパタイト結晶の不安定化や、アパタイト層のはく離による弛みが摩耗、腐食、疲労等の損傷症例が急増している。つまり、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を含んでいることを示唆している。

2. 研究の目的

整形外科インプラントを必要とする患者の急速な増加に伴い、患者個々の骨格・症状等に合わせた高生体適合性インプラント (以下、カスタムメイドと称する) が求められている。本研究では、骨形状の三次元 CAD データ等から薄層の断面形状を作製し、それを順次積層して三次元モデルを造形する技術の構築を、骨に近い弾性率を有するチタン合金で行うことを目的とした。

次に、チタン合金は生体機能性を備えていないので、骨を引き寄せ、協調し融合する骨伝導能の付与が不可欠である。そこで、チタン合金表面に最適な凹溝空間を設け、熱処理を施せば体内で自発的にアパタイト核が析出・形成する骨伝導能付与技術の構築を目的とした。

以上のような観点から、低弾性 β 型 Ti-15Mo-3Zr-3Al 合金を対象に、以下の 2 点を目的として具体的に研究を実施した。その際、長期間にわたり安全・安心して利用できる信頼性の高い生体材料の創製を目指し、単に開発・評価研究に留まらず、学術的観点からそこに至る系統だった機能発現機構を追求することをも目的とした総合的な基礎研究を実施した。

(1) レーザで金属粉末を部分的に完全溶融

固化させながら積層する造形法にて、低弾性生体用チタン合金の創製を行った。その際、粉末表面と溶融部表面との親和性、熱伝達による焼結・溶融特性について、結晶学的及び組織学的観点から系統的に解明し検討を加えた。

(2) 生体と調和し骨組織と協調する融合層を形成させるための骨伝導能を与える空間デザインを開発した。また、擬似体液中でアパタイトが析出する熱処理条件も探求する。そして、凹状溝が安全安心であることを検証するための疲労寿命評価を実施した。また、そのための試験装置を新規に購入した。

3. 研究の方法

(平成 22 年度) 本研究で使用するレーザ焼結型積層造形機 (独 EOS 社製 EIOSINT M270) の原理は、他の積層造形機と同様、三次元形状を多数の積層面に薄層化し、一層毎に粉末材料を撒き、形状断面部にレーザビームを照射し、その熱でレーザ照射された部分を硬化させる。これを繰り返すことにより三次元形状を積層造形した。ここでは、Ti-15Mo-3Zr-3Al 合金を造形するに必要なレーザ出力、最大造形径等の細部の仕様条件を純チタンと Ti-6Al-4V 合金の例に習い創製を行い、微細構造と高力学化の観点から以下の通り遂行した。

(1) 構造: 積層造形した本材料の結晶構造の解析を、微小部 X 線回折装置 (既設) を用いて行った。また、ミクロな結晶方位分布を EBSD を用いて結晶方位解析を行った。そして、空間的・時間的高倍率な微細組織を、既設の走査型共焦点レーザ顕微鏡、FE-SEM (EDX)、AFM を用いて詳細に観察を行った。

(2) 力学: 積層造形した本材料は焼結材であり、通常の鍛造品に比較し力学特性は異なると予想される。したがって、基本的な力学特性である強度、延性、疲労強度等について評価した。また、熱処理温度が力学特性に及ぼす影響について評価した。とくに、本申請で購入予定の平面曲げ・圧縮疲労試験機を用いて、生体応用を視野に入れた条件下で疲労寿命評価を行った。

(平成 23 年度)

骨欠損部に埋入された同材が骨と直接結合するためには、その表面で骨類似アパタイト層の形成、すなわち、骨伝導能の付与が必要である。ここでは、骨伝導能の付与を凹溝加工と熱処理により擬似体液中で自発的にアパタイトが析出する空間デザイン (図 1) について検討する。すなわち、熱処理による水酸基 (OH-) の形成と、かかる表面と擬似体液との反応が重要である。とくに後者は、空間の大きさを凹形状とすることで空間濃度 (pH) を高め、析出反応を促進させることを

意図している。

(1) 凹溝形状を変化させた造形材を創製した。その際、凹溝幅、高さの検討(図2)を通じて、積層造形可能な限界空間の程度を検討した。

(2) (1)とは別に、擬似体液下で最適な空間から析出するアパタイトの結晶成長速度及び組織学的評価を行った(図3)(研究補助)。具体的には、アパタイト核の発生から成長過程の空間的・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、空間デザインが析出反応に関与するメカニズムを明確にすることを目的とした。

(3) 最適な熱処理条件を400℃~600℃の範囲で検討した。すなわち、水酸基の化学結合状態(ルチル型、アナターズ型)がアパタイト析出能に及ぼす影響を評価した。また、この温度は強度特性を向上させるための温度でもあり、力学的な観点と併せた総合的な評価を行った。

(平成24年度)

前年度に最適設計された空間形状データを造形機に入力することで創製された本合金の疲労寿命特性を擬似体液下で評価した。つまり、凹溝形状がき裂の発生に寄与するか否かを、ヒトの歩行バーンを模擬した曲げと圧縮応力下で試験を行った。

(1) 購入した疲労試験機を用いて、擬似体液下におけるヒトの歩行パターンで応力負荷を行い、より体内を考慮したアパタイト析出能の評価から、空間デザインが骨伝導能に及ぼす役割と効果を明確にすることを目的とした。すなわち、低弾性かつ生体機能を高次化した低弾性チタン合金の生体応用を視野に入れた学術研究を通じて、QOLを向上させるインプラントデバイスの提案を行った。

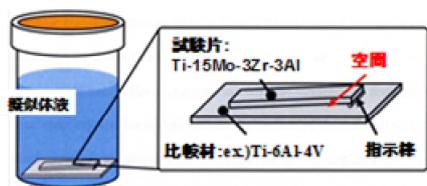


図1 空間デザインの概念

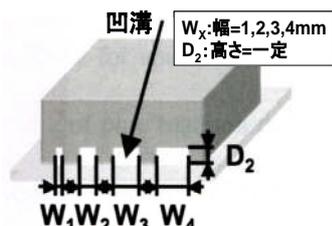


図2 凹溝を付与した造形と評価

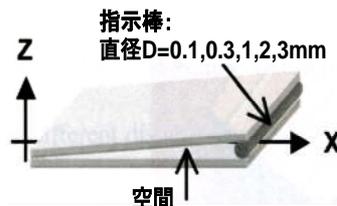


図3 最適な空間寸法の評価

4. 研究成果

(平成22年度)チタン合金は生体機能性を備えていないので、骨を引き寄せ、協調し融合する骨伝導能の付与が不可欠である。そこで、チタン合金表面に最適な凹溝空間を設け、熱処理を施せば体内で自発的にアパタイト核が析出・形成する骨伝導能付与技術の構築を目指し、下記の事柄について研究を行い、それぞれの成果を得た。

骨欠損部に埋入された同材が骨と直接結合するためには、その表面で骨類似アパタイト層の形成、すなわち、骨伝導能の付与が必要である。ここでは、擬似体液下で自発的にアパタイトが析出する骨伝導能の付与を、凹溝形状による空間デザインについて検討した。それには、熱処理による水酸基(OH-)の形成が、かかる表面と擬似体液との反応が重要である。すなわち、析出反応の促進を空間の大きさ、つまり、凹形状とすることでかかる濃度(pH)を高めることを意図している。

(1) 凹溝形状を変化させた造形材を作製した。その際、凹溝幅と高さの検討を通じて、積層造形可能な限界空間の程度を検討した。(図1参照)

(2) 擬似体液下で最適な空間から析出するアパタイトの結晶成長速度及び組織学的評価を行った。具体的には、アパタイト核の発生から成長過程の空間的・時間的高倍率観察と結晶構造解析による存在状態を把握した。次年度は、これらの空間デザインが析出反応に関与するメカニズムを明確にした。

(3) 最適な熱処理条件を400℃~600℃の範囲で検討した(図4参照)。すなわち、水酸基の化学結合状態がアパタイト析出能に及ぼす影響を評価した。また、この温度は強度特性を向上させるための温度でもあり、力学的な観点と併せた総合的な評価した(図5参照)。

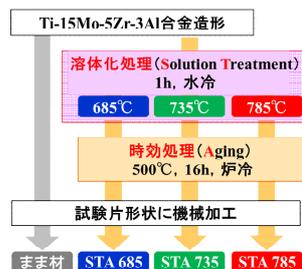
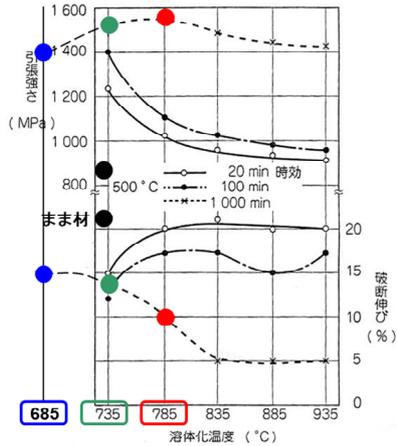


図4 試験片製作手順

外科インプラントTi材料:Ti-15Mo-5Zr-3Al
JIS T 7401-6



溶体化温度と時効による機械的性質の変化

図5 熱処理温度の選定

(平成 23 年度)

本研究で使用するレーザ焼結型積層造形機(既設)の原理は、他の積層造形機と同様、三次元形状を多数の積層面に薄層化し、一層毎に粉末材料を撒き、形状断面部にレーザビームを照射し、その熱でレーザ照射された部分を硬化させる。これを繰り返すことにより三次元形状を積層造形する。ここでは、Ti-15Mo-3Zr-3Al 合金および比較材であるTi-6Al-4V 合金の微細構造と高力学化の観点から以下の通り遂行した。また、造形機のレーザ照射とは別に、電子ビームで積層造形したTi-6Al-4V 合金についても併せて評価した。とくに、レーザと電子ビームとでは、ビームの線径が異なることから、造形物に対して微細な形状や大まかな形状に対して異なってくる。また、造形時間にも関わり、ひいては製造コストに繋がる点からも、各照射源から造形される素材についての力学特性および形状を考慮した生体適合性の評価は重要である。

(1) 構造: 積層造形材の結晶構造の解析を、微小部 X 線回折装置(既設)を用いて行った。

(図 6 参照)

また、ミクロな結晶方位分布を EBSD(既設)を用いた結晶方位解析については、不動態皮膚の再生能に優れた本素材の結晶方位分布についての技術的な試料作成から分析までは困難であり、解析はできていない状況である。しかしながら、その他の、空間的・時間的高倍率な微細組織については、既設の各観察装置にて詳細に観察することができた(図 7, 8 参照)。

(2) 力学: レーザ照射にて積層造形した材料は焼結材であり、通常の鍛造品に比較し力学特性は異なると予想されたが、基本的な力学特性である強度、延性については従来材と同程度の熱処理特性を反映していた。このこ

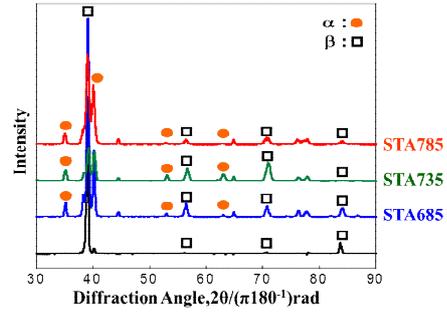


図 6 X 線回折による結晶構造の同定

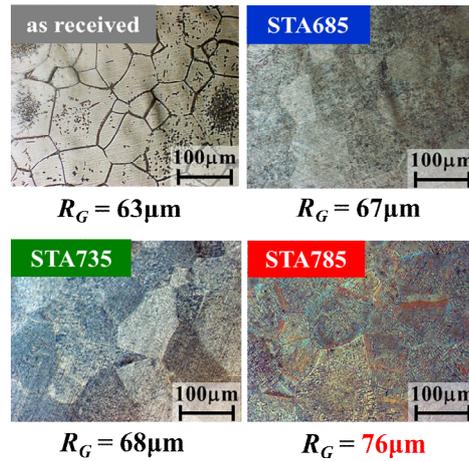


図 6 光学顕微鏡での観察写真

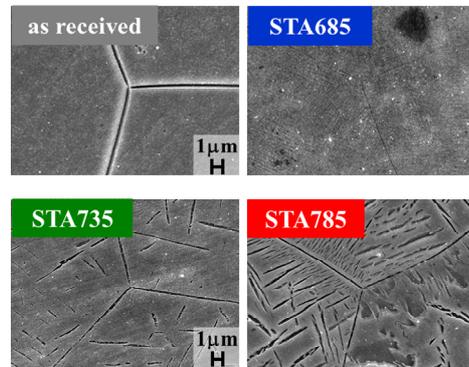


図 7 電子顕微鏡での観察写真

とは、電子ビーム造形材についても同様であった。しかしながら、疲労強度等については、従来材に対して極めて低いことがわかり、これについては強度向上の手法の提案が必要であることがわかった。図 8 に比較材である Ti-6Al-4V 合金のレーザビーム造形された試験片における疲労試験結果を示す。

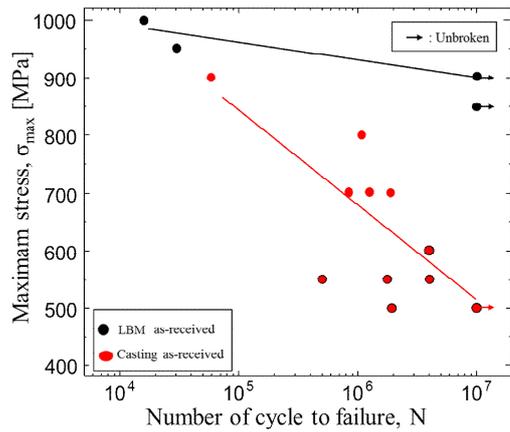


図8 疲労試験結果

(平成 24 年度)

前年度の結果より、レーザ溶融積層造形法により低弾性β型 Ti 系合金の造形・作製については行うことができている。そして、同材の結晶構造の解析と組織構造の観察、基礎的な力学特性の評価、強度向上に関する最適熱処理条件の把握についても検討している。骨伝導能の観点からは、凹溝形状を変化させた造形材の作製と、擬似体液下で空間の大きさがアパタイト析出能に及ぼす影響について評価した。

一方、残る課題としては、空間デザインを施した造形材の疲労寿命評価である。H24 年度は、本材料が医療用の生体材料として有効・応用が可能であるかについて総合的に評価を行った。

特にレーザビーム造形された素材には、製造上の欠陥を含んでいる。一般的な力学特性や生体適合性には直接的な影響を与えないので、あまり問題とはならない。しかしながら、疲労特性には影響を及ぼす可能性がある。すなわち、その製造上の欠陥を起点として、疲労き裂の発生、進展へと繋がる。したがって、生体適合性に優れていても、実使用の観点からは、検討すべき課題である。(図 9、10 参照)

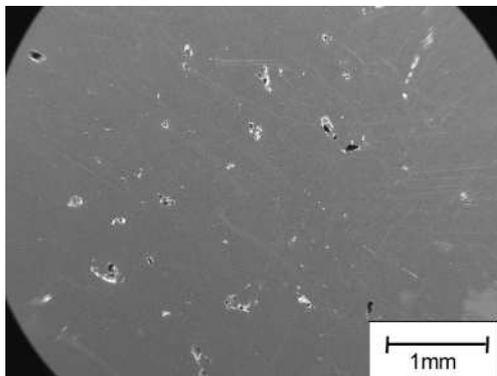


図9 微小欠陥と疲労強度との関係

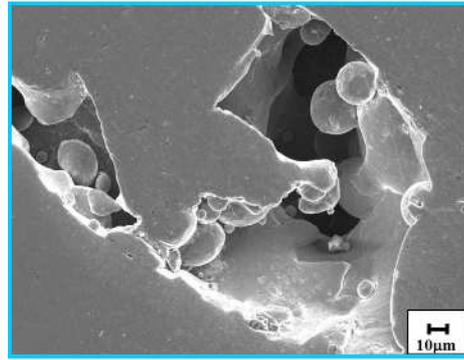


図10 図9中の微小欠陥の拡大

したがって、欠陥の大きさ、分布はもとより、欠陥をなくすプロセスあるいは、造形材の改質手法の提案などが必要と考えられる。また、空間デザインされた凹凸溝も破壊に起点になることが考えられる。製造からの微細構造の観点とデザインの側面から疲労特性について検討する必要があると考えられる。

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2件)(全て査読有り)

①久森紀之, 松川達哉, 水谷正義, 大森整, 西村直之, 網島義貴, 藏本孝一, 江面篤志, ELID 研削を施した人工関節用 Co-Cr 合金のピンオンディスク法による腐食摩耗特性の評価, 砥粒加工学会誌, 57, 2013, 235-240

②水谷正義, 久森紀之, 水野隆文, 江面篤志, 大内邦夫, 大森整, 藤原邦彦, 土居憲司, 藏本孝一, ELID 研削を施した Co-Cr 合金の超高分子量ポリエチレンによる摩擦環境下における腐食特性評価, 砥粒加工学会誌, 56, 2012, 184-189

〔学会発表〕(計6件)

①久森紀之, 電子ビーム積層造形法により作製したチタン合金の微細組織と引張疲労との相関性, 日本金属学会 2013 年春期大会, 2013 年 3 月, 東京理科大学

②久森紀之, ELID 研削を施した人工関節用 Co-Cr 合金の腐食摩耗特性の評価, 第 95 回人工関節の機能高度化研究会(招待講演), 2012 年 9 月, ナカシマメディカル(株)本社

③久森紀之, 金属粉末積層法を用いて造形したチタン合金の疲労特性, 日本材料学会 第 61 期通常総会・学術講演会, 2012 年 5 月, 岡山大学

④久森紀之, 医療用チタン合金の力学的機能性評価, チタノミックス研究会, 2012年3月, 豊橋商工会議所

⑤武井将史 久森紀之, 電子ビーム溶融法により造形されたチタン合金の疲労特性評価, 日本金属学会秋季大会, 2011年11月, 沖縄コンベンションセンター

⑥久森紀之, 医療用チタン合金の疲労特性に及ぼす表面改質とマイクロ組織の影響, 日本材料学会 第30回疲労シンポジウム, 2010年8月30日, 高知・高知城ホール

[図書] (計1件)

①久森紀之 (分担), エヌ・ティー・エス, 破壊力学大系 ―壊れない製品設計へ向けて― 第2編第2章1節「生体材料」(2011) 490 (5P 分担)

[その他]

ホームページ等

<http://www.me.sophia.ac.jp/~hisamori/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

久森 紀之 (HISAMORI NORIYUKI)

上智大学・理工学部・准教授

研究者番号: 80317510

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし