

令和 3 年 6 月 11 日現在

機関番号：12602

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2020

課題番号：15K20473

研究課題名（和文）Narrow Implantへの応用を目指した生体用チタン合金の高強度化

研究課題名（英文）Strengthening of biomedical titanium alloy for narrow implants application

研究代表者

蘆田 茉希 (Ashida, Maki)

東京医科歯科大学・生体材料工学研究所・助教

研究者番号：50708386

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,000,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、Ti-6Al-7Nb合金（受領材、溶体化処理後時効処理材、溶体化処理材）にHPT加工を行い、HPT加工条件の最適化によって伸びを維持したままの高強度化が可能であることが明らかになった。また、熱処理を行い加工前組織を検討した結果、溶体化処理材のHPT加工後において最も高い引張強さが得られることが明らかになった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

高強度チタン合金の、従来の歯科インプラントより直径の小さいナローインプラントへの応用ができれば、適用可能となる症例が増加する。これによって大がかりな骨造成手術の必要がなくなり、手術の回数、治療期間の短縮などの観点から歯科インプラント治療患者への負担を低減することができる。またナローインプラントのみではなくインプラント小型化促進につながる。

研究成果の概要（英文）：A Ti-6Al-7Nb alloy with three different initial microstructures was processed by high-pressure torsion (HPT) and the resultant microstructure and mechanical properties of the alloy after HPT processing were investigated. The Ti-6Al-7Nb alloy with the bi-modal microstructure was strengthened more than with the equiaxed microstructure when the alloy was processed by HPT. Furthermore, the alloy with bi-modal microstructure consisting of equiaxed β -phase and acicular α' -phase showed a good balance between the tensile strength and the elongation to fracture after 1 revolution. In summary, large strength and elongation of the Ti-6Al-7Nb alloy were simultaneously achieved by HPT processing.

研究分野：金属生体材料学

キーワード：チタン合金 巨大ひずみ加工 金属生体材料

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

金属材料は力学的信頼性の観点から、古くから生体材料として利用されている。歯科インプラント体には純チタン (Ti) が用いられているが、Narrow Implant は径が細いため、強度が必要なため Ti-6Al-4V (mass%) が使用される。Ti-6Al-4V 合金は代表的な生体用 Ti 合金であるが、この合金の成分である V は、イオンが溶出すると強い細胞毒性を示すことが指摘されており、これを使用しない Ti-6Al-7Nb (mass%) 合金が欧州で多く利用されている。この合金は低毒性元素のみで構成され軽量で優れた耐食性と組織適合性を示すため、人工股関節や脊椎固定器具、歯科インプラントなどに利用されている。

近年、骨が痩せている症例が増加しており、Narrow Implant が選択される。この小型化に伴い Ti 合金の高強度化が必要となる。しかし、一般的に強度と伸びの関係は、一方が優れていれば他方が劣るという関係にあり、強度が増加すると伸びが低下する。伸びが小さいことの問題は、破壊しやすく、耐久性に劣るという点である。このため、伸びを維持したままの高強度化が必要となる。そこで、High Pressure Torsion (HPT) 加工に着目した。HPT 加工は金属材料などの機械的特性向上に用いられる巨大ひずみ加工法であり、試料に高い圧力を加えながら下側の金型を回転させることによって、試料にねじり変形を加える。

2. 研究の目的

本研究では、Narrow Implant への応用を目指し、Ti-6Al-7Nb 合金の伸びを維持したままの高強度化を図るべく、Ti-6Al-7Nb 合金に HPT 加工を適用し、HPT 加工条件の最適化、熱処理による加工前組織の最適化を行うことを目的とする。

3. 研究の方法

Ti-6Al-7Nb 合金棒材を切断し、HPT 加工を施した。HPT 加工条件である、圧力と回転数を変化させ、最適な加工条件を検討した。また、Ti-6Al-7Nb 合金を切断後、石英ガラス管中に真空封入し、一方は β 変態点直下での溶体化処理後に時効処理を行い、もう一方は β 変態点直下での溶体化処理を行った。2 種類の熱処理を加え、加工前組織を変化させた。その後 HPT 加工を施した。HPT 加工条件では回転数を変え、最適な加工前組織および回転数を検討した。それぞれの試料において、X 線回折 (XRD) 装置を使用した相同定、走査型電子顕微鏡 (SEM)、電子線後方散乱回折 (EBSD) および透過型電子顕微鏡 (TEM) を用いた組織解析を行った。また、機械的性質の評価として、ビッカース硬さ測定、引張試験を行った。

4. 研究成果

受領材 Ti-6Al-7Nb 合金の組織は、XRD パターンから、 α 相および小さい β 相のピークが確認され、SEM 観察の結果、等軸の α 相と β 相の粒が観察されたことから、受領材の組織は等軸 $\alpha + \beta$ 組織であった。また、等軸 α 相の結晶粒径は約 $5 \mu\text{m}$ であった。TEM 観察の結果、HPT 加工後には結晶粒が微細化しており、圧力 6 GPa、回転数 5 回転後では微細な結晶粒が得られた。6 GPa で HPT 加工を行った場合に、2 GPa に比べて微細な結晶粒が確認された。

ビッカース硬さは、2 GPa、6 GPa とともに、HPT 加工回転数の増加に伴い増加した。引張試験の結果、引張強度は、HPT 加工前に比べ、加工後は増加した。また、破断伸びは 6 GPa、1 回転と 5 回転後では、加工前とほぼ同じであった。

次に、Ti-6Al-7Nb 合金に溶体化処理および時効処理 (STA) を行い、HPT 加工を施した。加工前組織は、STA 処理を行わなかった試料 (受領材) は等軸組織、STA 処理を行った試料 (STA 材) は α 相の等軸晶組織と α 相と β 相がラメラ状になったラメラ組織とのバイモーダル組織 (図 2) であった。TEM による組織観察 (観察場所は、試料中心から 3.5 mm である) を行った結果、電子線回折像は、両試料ともにリング状であり、結晶粒間の方位差が大きい微細結晶粒組織である。 α 相の結晶粒径は、HPT 加工回転数の増加に伴い小さくなり、STA 材の場合も、微細化が進み、平均 110 nm の微細結晶粒が得られたが、受領材に比べるとわずかに大きかった。しかし 20 回転後では、受領材はあまり変化がないのに対し、STA 材ではさらに微細化し平均約 50 nm の超微細結晶粒が得られた。また、 α 相と β 相の結晶粒径を比較すると、 β 相の方が小さく、平均粒径は 40 nm であった。これは結晶構造の違いに起因しており、 α 相 (hcp) に比べて β 相 (bcc) はすべり面が多く、塑性変形が起こりやすいためと考えられる。

加工前のビッカース硬さは、受領材は 325 HV、STA 材は 310 HV であった。HPT 加工の回転数の増加に伴い両試料ともに硬さは増加した。相当ひずみに対してプロットすると、相当ひずみの小さい領域では硬さは同程度であるが、相当ひずみが大きくなると受領材に比べて STA 材の

方が硬さが大きい。これは、TEM 観察の結果と一致しており、20 回転後は等軸晶組織に比べてバイモーダル組織の方が超微細結晶粒が得られたためと考えられる。

次に、Ti-6Al-7Nb 合金に熱処理（溶体化処理）を行った場合の結果を述べる。HPT 加工前の Ti-6Al-7Nb 合金の SEM 観察結果から、溶体化処理後の試料（STQ 材）は、等軸組織と針状組織が混在するバイモーダル組織であった。この針状組織については TEM 観察の結果、針状組織内に多数の双晶が確認され、針状組織は α' マルテンサイト相であることが確認された。

HPT 加工後の、ディスク試料中心付近および端の SEM 像から、回転数 1 回転では、中心付近の等軸組織はわずかに歪んでいるものの HPT 加工前の組織と比べてあまり変化がみられなかった。しかし、試料中心からの距離が大きくなるにつれて等軸組織が伸長しており、また回転数の増加に伴い伸長具合が増加した。一方、針状組織の HPT 加工による変化は観察できなかった。

HPT 加工を施した場合の TEM 組織から、1 回転および 5 回転では、同一試料内で微細結晶粒と粗大結晶粒が混在する不均一組織であることがわかった。一方、20 回転では、試料全体で微細結晶粒のみが存在する均一組織であった。微細結晶粒部分の暗視野像から結晶粒径を測定すると、回転数の増加に伴い結晶粒が微細化していることがわかった。また各試料の SAED パターンから、1 回転、5 回転ではスポット状回折像とリング状回折像の混在領域が得られたのに対して、20 回転ではリング状の回折像のみが得られた。これらの結果から、回転数の増加に伴い結晶粒が微細化し、結晶方位がランダムになったと考えられる。

HPT 加工前のビッカース硬さの平均値は、340 HV であった。HPT 加工を施すことによって硬さは増加した。相当ひずみに対してプロットすると、相当ひずみの小さい領域で急激に増加し、相当ひずみの増加に伴いビッカース硬さは一定値をとり、5 回転で飽和した。

HPT 加工前の引張強度は 1100 MPa、破断伸びは 23% であった。1 回転では加工前に比べて、破断伸びはほとんど減少せず引張強度が増加した。一方で、5 回転では引張強度が増加したものの破断伸びは減少した。20 回転で引張強度は 5 回転に比べて減少し、脆性的に破壊した。この原因を調べるため、引張試験後の破面観察および HPT 加工試料の断面観察を行った。加工前および 1 回転では破面にディンプルが観察され、延性破壊であることがわかった。しかし、5、20 回転では破面にクラックが多数確認され、高倍率で観察すると細かいディンプルが部分的に観察された。これらのクラックは HPT 加工中に試料内部に発生したマイクロクラックが起点となり形成したと考えられ、5、20 回転の引張試験で脆性的に破壊した原因と考える。

EBSD を用いて組織解析を行った結果、HPT 加工後はどの試料においても微細化していることが示された。また、等軸粒内では粒内の結晶方位に変化があり、TEM 観察で確認された比較的大きい粒においてはサブグレイン組織の形成段階であると考えられる。また、針状組織は直線上に分断されて細くなっていることがわかり、これによって他の試料に比べて STQ 材では微細組織が得られ、高い引張強さが得られたことが明らかになった。

以上のことから、本研究では、Ti-6Al-7Nb 合金（受領材、STA 材、STQ 材）に HPT 加工を行った結果、HPT 加工条件の最適化によって伸びを維持したままの高強度化が可能であることが明らかになった。また、熱処理を行い加工前組織を検討した結果、STQ 材の HPT 加工後において最も高い引張強さが得られることが明らかになった。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Chen P, Ashida M, Doi H, Tsutsumi Y, Horita Z, Hanawa T	4. 巻 57
2. 論文標題 Cytocompatibility of Ti-6Al-7Nb through High-Pressure Torsion Processing	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Materials Transactions	6. 最初と最後の頁 2020-2025
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.2320/matertrans.MI201515	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 -

〔学会発表〕 計9件（うち招待講演 1件/うち国際学会 7件）

1. 発表者名 Ashida M, Hanawa T, Chen P, Tsutsumi Y, Horita Z
2. 発表標題 Strengthening of Ti-6Al-7Nb alloy by high-pressure torsion processing
3. 学会等名 The 14th World Conference on Titanium (Ti-2019)（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Ashida M, Kitamura Y, Chen P, Doi H, Tsutsumi Y, Takizawa Y, Yumoto M, Otagiri Y, Horita Z, Hanawa T
2. 発表標題 Strengthening of Ti-6Al-7Nb alloy by high-pressure sliding
3. 学会等名 International Workshop on Giant Straining Process for Advanced Materials in 2018(GSAM2018)（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 蘆田 菜希, 陳 鵬, 土居 壽, 堤 祐介, 堀田善治, 埴 隆夫
2. 発表標題 高圧ねじり加工によるバイモーダル組織を有するTi-6Al-7Nb合金の高強度化
3. 学会等名 軽金属学会第133回秋期大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Ashida M, Chen P, Doi H, Tsutsumi Y, Horita Z, Hanawa T
2. 発表標題 Strengthening of Ti-6Al-7Nb alloy with bimodal microstructure by high- pressure torsion
3. 学会等名 International Workshop on Giant Straining Process for Advanced Materials(GSAM2017) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 盧田 菜希, 陳 鵬, 土居 壽, 堤 祐介, 埴 隆夫, 堀田善治
2. 発表標題 HPT加工を施した + 型Ti-6Al-7Nb合金の組織と機械的特性
3. 学会等名 軽金属学会第128回春期大会
4. 発表年 2015年

1. 発表者名 Ashida M, Chen P, Doi H, Tsutsumi Y, Hanawa T
2. 発表標題 Influence of heat treatment on mechanical properties of Ti-6Al-7Nb processed by severe plastic deformation
3. 学会等名 The 6th International Symposium on Advanced Materials Development and Integration of Novel Structured Metallic and Inorganic Materials (AMDI-6) (国際学会)
4. 発表年 2015年

1. 発表者名 Ashida M, Chen P, Doi H, Tsutsumi Y, Hanawa T, Horita Z
2. 発表標題 Effects of grain refinement by high-pressure torsion on mechanical properties of Ti-6Al-7Nb
3. 学会等名 The 13th World Conference on Titanium (Ti-2015) (国際学会)
4. 発表年 2015年

1. 発表者名 Ashida M, Chen P, Doi H, Tsutsumi Y, Hanawa T, Horita Z
2. 発表標題 Effects of initial microstructure on the resultant microstructure and mechanical properties of Ti-6Al-7Nb alloy after HPT processing
3. 学会等名 International workshop on giant straining process for advanced materials (GSAM2015) (国際学会)
4. 発表年 2015年

1. 発表者名 Ashida M, Chen P, Doi H, Tsutsumi Y, Hanawa T, Horita Z
2. 発表標題 Superplasticity of biocompatible Ti-6Al-7Nb alloy after processing by high-pressure torsion
3. 学会等名 12th International Conference on Superplasticity in Advanced Materials (ICSAM) (国際学会)
4. 発表年 2015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