

令和元年6月7日現在

機関番号：32621

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K05986

研究課題名(和文) 3D造形カスタム関節運動器の耐疲労強度化と骨機能付与の一体化創製技術の構築

研究課題名(英文) Construction of integrated creation technology of high fatigue resistance and bone function addition of 3D modeling custom articulator

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

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、関節運動器の骨形状3D CADデータからチタン合金とコバルトクロム合金の3D造形カスタム関節運動器を造形し、短時間高速フレーム骨類似アパタイト(HA)溶射で耐疲労強度化プロセスの確立及び骨伝導能付与技術の一体化創製技術の構築を目的とした。具体的には、3D造形材には造形時の欠陥が残留する。加えて、骨伝導能に乏しい金属なので、骨と協調・融合する機能性の付与が不可欠である。短時間高速フレームHA溶射によるマルテンサイト変態で、組織の微細化と欠陥の除去で疲労強度・寿命の向上、併せて、疑似骨HAを核付けした骨伝導機能付加カスタムメイド関節運動器の一体化創製技を提案するものである。

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3D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。3D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。短時間高速フレーム溶射加熱処理技術などで造形時の欠陥を除去・減少させ、耐疲労特性の向上を目的とした本プロセスの構築は、医療用3D造形材の実用化を視野に入れた重要かつ本質的と判断できる。また、HAを核付けする生体機能付与の実現を同時に構築する両面に学術的な特色がある。

研究成果の概要(英文)：In this study, 3D shaped articulators of titanium alloy and cobalt chromium alloy were formed from 3D CAD data of bone shape of articulator. And we established the fatigue strength strengthening process by short time high speed flame bone apatite spraying method. We also constructed an integrated creation technology for bone conduction technology. Specifically, defects in modeling remain in 3D modeling materials. It is essential for metallic materials with poor bone conductivity to have the ability to fuse with bone. The microstructure was refined by martensitic transformation by short time high speed flame HA spraying. In addition, fatigue strength and life were improved by removing defects. Then, we constructed an integrated creation technology of bone conduction function added custom made articulator with nucleated artificial bone HA.

研究分野：環境材料強度学

キーワード：生体材料 医療・福祉 チタン合金 解析・評価 機械材料・材料力学

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 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)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が求められている。

カスタムインプラントの製造には、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)が期待されている。材料的観点からは、チタン合金(Ti-6Al-4V)とコバルトクロム合金(Co-Cr)が股・膝関節の荷重支持部に適用されている。チタンの弾性率(110GPa)は骨(10-30GPa)に比べて高く、インプラント周囲骨への荷重の遮蔽(しゃへい)が骨強度低下・骨折を招くため、低弾性なチタンが求められている。コバルトクロムは、構成元素の毒性懸念から、長寿命デバイスに限界がある。

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。これを改善する骨類似アパタイト(HA)をプラズマ溶射で被覆した非セメント固定は、高温成膜によるHA結晶の不安定化、HA層のはく離が弛み、摩耗、腐食、疲労等の二次損傷が急増している。骨との直接結合の観点から骨伝導能を付与するHA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。デバイス表面に体液との反応でHAを発現させ骨結合させるアルカリ加熱チタンは、HA発現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が必要とされている。

### 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。本研究では、関節運動器の骨形状3D CADデータからチタン合金とコバルトクロム合金の3D造形カスタム関節運動器を造形し、短時間高速フレーム骨類似アパタイト(HA)溶射で耐疲労強度化プロセスの確立及び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。

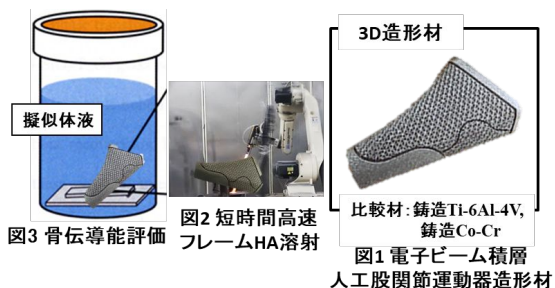
具体的には、3D造形材には造形時の欠陥が残留する。加えて、骨伝導能に乏しい金属なので、骨と協調・融合する機能性の付与が不可欠である。短時間高速フレームHA溶射によるマルテンサイト変態で、組織の微細化と欠陥の除去で疲労強度・寿命の向上、併せて、擬似骨HAを核付け(極微量定着)した骨伝導機能付加カスタムメイド関節運動器の一体化創製技術の構築を目的とする。

### 3. 研究の方法

まず、骨形状の3D CADデータに基づく電子ビーム積層造形法により、Ti-6Al-4V合金及びCo-Cr合金製の人工股・膝関節運動器の造形を行う(図1例)。そして、造形欠陥による疲労特性低下を抑制するための短時間高速フレーム溶射熱処理を行い(図2)、組織構造観察と結晶構造の解析を行う。加えて、同熱処理で欠陥が除去され、耐疲労強度が向上する最適条件を把握し、その機構を探索する。

次に、骨伝導能を与える短時間高速フレームアパタイト(HA)溶射熱処理による表面機能・デザインを検討する。具体的には、擬似骨HAを核付け(極微量定着)した造形材の創製と、擬似体液下でHA核の骨機能に及ぼす影響を評価する(図3)。

これらを踏まえ、耐疲労強度に優れ、骨伝導能付与を施した造形材の耐疲労強度・耐寿命評価を行う。



### 4. 研究成果

骨形状の3D CADデータに基づく電子ビーム積層造形法により、Ti-6Al-4V合金及びCo-Cr合金製の人工股・膝関節運動器の造形については、既に多くの機関でも造形が可能となっている。とくに、ポラス構造の造形物については、多くの造形に関する知見とノウハウが各機関で整ってきている。これに対して、荷重支持部に対する造形物については、さらなる力学的安全性の検証が求められている。積層造形で作製された部材を医療デバイスとして適用する場合、力学的信頼性は最も重要な指標の1つである。従来は鑄造・鍛造と比較し、粉末を出発原料とする金属積層造形であるために、欠陥やレーザーor電子ビームの未熔融粉末が造形体内部で存在し、これらが、疲労強度の低下を導くためである。これら欠陥は諸力学特性に悪影響を及ぼすことから、造形後にHot Isostatic Pressing(HIP)処理や、造形条件そのものの最適化による相対密度の向上が課題となっている。医療デバイスとして用いられている代表的な金属材料であるSUS316L、Co-Cr-Mo、Ti-6Al-4Vにおける相対密度ならびに引張特性は鑄造材、鍛造材に匹敵、もしくはそれらを上回る。加えて、相対密度はほぼ100%に近く緻密体が得られている。しかしながら、わずかな残留欠陥が、疲労強度を顕著に低下させる問題の解決が急務であり、本研究課題は、これを解決しようとするものである。

具体的には、短時間高速フレーム溶射熱処理を行い、組織構造観察と結晶構造の変態プロセス

を用いて、欠陥を除去し、耐疲労強度を向上させる最適条件の把握と、その機構の探求である。

短時間高速フレーム溶射熱処理については、特許性の観点から詳細な結果は割愛させて頂くが、短時間プロセスであることから、表面に残留する欠陥については効果（縮小や消滅）を有するが、内部に残留する欠陥については寄与しないことがわかった。そもそも、積層造形材（本課題では電子ビーム積層造形）には、図4に示すような残留欠陥が多く存在する。このような残留欠陥を含んだ造形材のねじり疲労試験結果を図5に示す。同図より、鍛造材に比べて積層材の方が疲労強度は大きいことがわかる。しかしながら、残留欠陥で破壊する試験片は早期に破断していることがわかる。すなわち、同じ応力振幅で得られる破断繰返し数にバラツキが大きいことを示唆している。また、繰返し破断回数 $10^7$ での応力振幅における造形位置については、底部から切出した造形材に比べて上部から切出した造形材の方が大きいことがわかる。このことは、底部に比べて上部の方が微細な組織を呈していることに影響している。

ねじり疲労破断した破断面の観察結果、早期の繰返し回数で破断した造形材では、残留欠陥を起点とした破断面が観察された。これに対して、残留欠陥を起点としない造形材、すなわち、繰返し回数が増加した破断面では、明確な破壊起点は認められなかった。これらより、残留欠陥の存在は、疲労特性の低下に大いに寄与することが明らかである。すなわち、これら残留欠陥を無くす努力が必要であり、本課題では短時間プロセスを適用した。しかしながら、先に述べたように、表面欠陥に効果を及ぼすが、内部欠陥には大きな効果を有さないことがわかった。すなわち、造形材内部に存在する欠陥に対しても縮小あるいは、消滅させるようなプロセスの提案が必要である。

そこで、本課題では、先の研究で開発・提案した高周波熱処理を比較技術として検討を行った。得られたねじり疲労試験結果を図6に示す。同図より、高周波熱処理により表面および内部を改質した積層造形材のねじり疲労強度は、未処理の造形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、造形材および鍛造材への高周波熱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7に同処理材のねじり疲労試験後の破断面観察の結果を示す。同図より、破壊起点近傍には残留欠陥は認められなかった。ただし、造形材には欠陥は残留している。つまり、破壊の起点に残留欠陥が寄与していないことが示された。このことは、硬さの向上と圧縮残留応力の付与が残留欠陥による強度低下以上の役割を果たした結果であることを硬さ試験およびX線回折による残留応力測定試験より明らかとなった。

加えて、熱処理による組織変態が疲労特性に及ぼす影響が大いに考えられる。EBSDによるIPF Mapより造形まま材の平均 $\alpha$ 粒径は $4.24\mu\text{m}$ 、熱処理材では $1.97\mu\text{m}$ が得られた。これは、熱処理に伴うマルテンサイト変態による組織の微細化を示唆している。一般的に疲労破壊は、

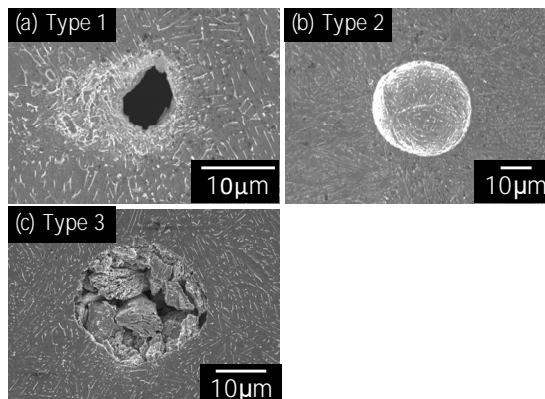


図4 積層造形したTi-6Al-4V合金に残留する欠陥タイプ。

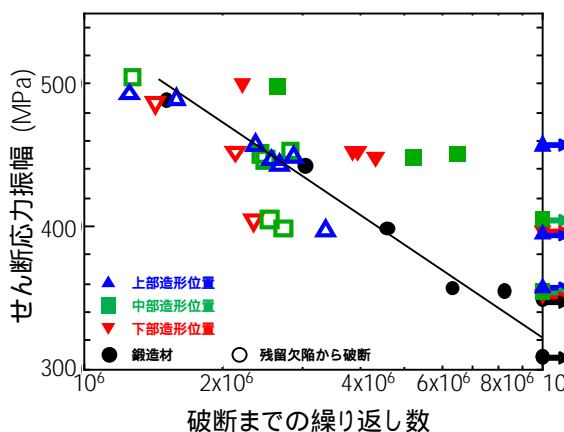


図5 各種造形位置によるねじり疲労試験結果。

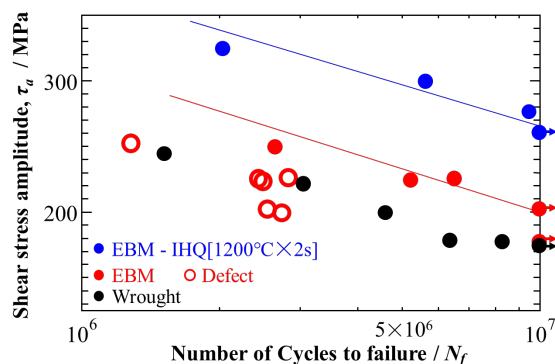


図6 改質したTi-6Al-4V合金のねじり疲労試験結果。

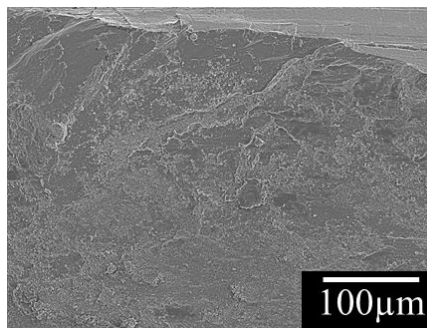


図7 熱処理材の破断面観察結果



組織内の転位が移動することによって発生する。微細化された組織は、転位の移動を抑制することから、結果として疲労破壊が抑制されたものを考えられる。また、積層造形材の $\beta$ 相の割合は、未処理材では2.2%、熱処理材では0.5%が得られ、 $\beta$ 相の減少も確認された。 $\beta$ 相はbcc構造を有し、すべり系が12であるのに対し、マルテンサイト相はhcp構造を有し、すべり系が3である。すなわち、 $\beta$ 相の減少はすべり系の減少を意味する。これらすべり系の減少も疲労破壊の抑制に寄与し、疲労強度の向上に繋がると考えられる。

骨伝導能の評価については、アパタイト溶射であることから、擬似体液下でアパタイト核の生成と成長は観察された。しかしながら、既存合金のTi-6Al-4Vへアパタイト溶射した際に得られるカルシウムとリンの比率や微細組織などについては、系統だった結論には至らず、今後も検討する予定である。このことは、先に述べたように積層造形で得られる $\alpha$ と $\beta$ の結晶構成比率が、従来合金の鍛造材や鋳造材で得られる比率と異なること。加えて、造形材の微細組織は針状であるのに対して、従来合金では球状であることなどが考えられる。これより、アパタイト溶射による表面機能・デザインの検討までは十分な遂行に至っていないが、擬似骨アパタイトの核付けと、擬似体液下でのアパタイト成長による骨機能の付与については可能なプロセスである。

本課題研究を通して、耐疲労強度に優れ、骨伝導能付与を施した造形材の耐疲労強度・寿命評価については、残留欠陥の徹底的な減少および削除プロセスを提案することがまずは大事であることが明らかとなった。完全に消滅させることは困難であるが、それを補完する硬さや残留応力の付与が耐疲労強度の向上に大いに寄与すると考えられる。また、微細組織のマルテンサイト化は、転移移動の抑制に寄与する学問的根拠により、強度向上の機序の一助となる。積層造形技術を用いた未来型のインプラントデバイスは、現在の平均骨格形状に基づいた情報からの画一的なサイズのみのもので従来製品とは異なり、これまで不可能とされた活動的な生活を提供でき、その実現のために欠くことの出来ない極めて有効かつ効果的な手法であると考えられる。そのためには、耐疲労強度化プロセスの確実な確立が必要である。そして、骨伝導能付与技術を担保させることで、一体化創製技術の効果が関節運動器インプラントを必要とする患者に普及するものとする。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 1件)

1) 久森紀之，電子ビームを応用した医療向け積層造形品の材料強度評価，レーザー協会誌，査読有，Vol.41，2016，P20-27

〔学会発表〕(計 19件)

1) 久森紀之，電子ビーム積層造形したTi-6Al-4V合金の微細組織と疲労特性の関係，軽金属学会関西支部シンポジウム(招待講演)，2018

2) 久森紀之，積層造形したチタン合金の微細組織と疲労特性の関係，日本機械学会2018年次大会，2018

3) 福田元樹，久森紀之，小林祐次，医療用Co-Cr合金の表面性状と組織に及ぼすショットピーニングの効果，日本機械学会2018年次大会，2018

4) 黒沼あゆみ，久森紀之，積層造形したチタン合金の耐食性の評価，日本機械学会2018年次大会，2018

5) 福田元樹，久森紀之，小林祐次，ショットピーニングを施した医療用Co-Cr合金の表面性状・組織，日本材料学会第68期通常総会・学術講演会，2018

6) 黒沼あゆみ，久森紀之，積層造形チタン合金の耐摩耗性と耐食性の評価，日本材料学会第68期通常総会・学術講演会，2018

7) 黒沼あゆみ，久森紀之，積層造形したチタン合金の耐摩耗性と耐食性の評価，日本航空宇宙学会第60回構造強度に関する講演会，2018

8) 久森紀之，電子ビーム積層造形したTi-6Al-4V合金の微細組織と疲労特性の関係，日本金属学会，2018

9) 鈴木もえ，久森紀之，小泉雄一郎，千葉昌彦，電子ビーム積層造形コバルトクロム合金の熱処理による疲労特性向上，日本金属学会，2017

10) 近藤弘理，久森紀之，電子ビーム積層造形Ti-6Al-4V合金のねじり疲労特性評価，日本金属学会，2017

11) 近藤弘理，久森紀之，表面改質による3D造形チタン合金のねじり疲労特性向上の試み，日本材料学会，2017

12) 鈴木もえ，久森紀之，小泉雄一郎，千葉昌彦，電子ビーム積層造形法により作製したCo-Cr-Mo合金の疲労特性に結晶構造が及ぼす影響，日本金属学会，2017

13) 近藤弘理，久森紀之，3D造形チタン合金の欠陥観察と評価，日本金属学会，2017

14) 鈴木もえ，久森紀之，小泉雄一郎，千葉昌彦，積層造形コバルトクロム合金の疲労特性に及ぼす熱処理の影響，日本金属学会，2016

- 15) 近藤弘理, 久森紀之, 電子ビーム溶融法により造形した Ti-6Al-4V 合金の欠陥観察と評価, 日本金属学会, 2016
- 16) 久森紀之, 3D 積層造形法による生体・医療材料の創製とその諸特性, 日本材料学会疲労・回生体・医療材料シンポジウム, 2016
- 17) 久森紀之, 3D 積層造形した医療用インプラントデバイスの現状と展望, 日本材料学会第 29 回信頼性シンポジウム (招待講演), 2016
- 18) 鈴木もえ, 久森紀之, 小泉雄一郎, 千葉昌彦, 3D 造形コバルトクロム合金の疲労特性に及ぼす熱処理の影響, 日本機械学会年次大会, 2016
- 19) 近藤弘理, 久森紀之, 電子ビーム溶融法により造形した Ti-6Al-4V 合金のねじり疲労特性評価, 日本機械学会年次大会, 2016

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 0 件)