

3次元レーザ積層造形によるバイオインプラント材の作製技術

新潟大学 自然科学系 (工学部)

教授 新田 勇

(平成 25 年度一般研究開発助成 AF-2013208)

キーワード：選択的レーザ積層粉末造形, 人工骨, チタン粉末, ポーラス

1. 研究の目的と背景

我が国では高齢者人口の比率は 2055 年までに 40.5 % に達すると予測され¹⁾, 骨粗鬆症をはじめとする骨関節疾患の患者数も急激に増加している. この治療には, 人工物のインプラントが多く用いられる. インプラントに求められる機能として, 患部の複雑な三次元形状に対応できること, 自家骨との早期固定性が高いこと, 自家骨と機械的性質が近いこと, の 3 点があげられる. また, 早期固定性向上のために, インプラント内部に微細構造を持ち, 骨誘導を促すことが望まれる²⁾. これらの要求を満たすものとして, 筆者らが試作した頸椎の椎間板インプラントを図 1 に示す. レーザ焼結のみで, 後加工をしなくても, 設計通りのきれいな形状に仕上げることができている. 骨芽細胞が入り込みやすいポーラス構造を有するために早期固定性には良いが, 強度的にはまだ改善の余地がある. 現在この椎間板はプラスチックや金属で作製されているが, プラスチックでは強度的に弱い場合があり, 金属では応力遮蔽の問題が生じることがある. 適度な機械的性質を持ったインプラントを作製することが課題となっている.

チタン金属のヤング率は 100 GPa 以上であり, 自家骨の 0.5~30 GPa と比較した場合に非常に大きいものとなっている. 両者のヤング率に差があると応力遮蔽を引き起こし, インプラント周辺の自家骨の劣化やインプラントの早期弛緩などの原因となる. そこで, チタン製インプラントを多孔質体にすることによって等価ヤング率を下げ, 自家骨のヤング率に近づけることを当面の研究目標としている. これを実現するために, チタン粉末を小スポット径レーザ光により加工し, 微細な構造を造形することが考えられる. そこで, 本研究で

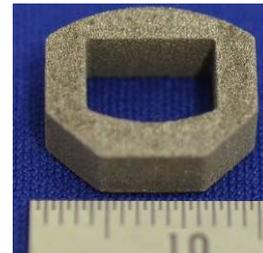
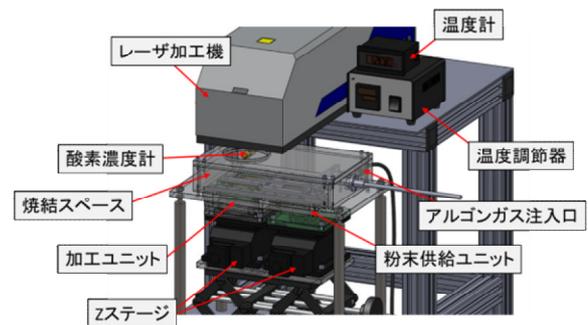
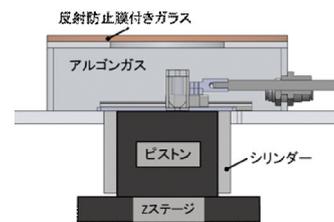


図 1 試作した頸椎の椎間板インプラント



(a) 装置外観



(b) 粉末供給部

図 2 積層造形装置の概略

表 1 レーザ積層造形条件

試験片	レーザ出力 P [W]	走査速度 v [mm/s]	走査ピッチ s [μm]	積層厚 T [μm]	エネルギー密度 E [J/mm^3]	加熱温度[K]
A	6.8	50	35	50	77.7	-
B	6.8	50	35	100	38.9	-
C	6.8	50	35	150	25.9	-
D	6.8	100	35	50	38.9	-
E	6.8	150	35	50	25.9	-
F	6.8	50	70	50	38.9	-
G	6.8	50	105	50	25.9	-
H	11.5	50	30	50	153.3	473
I	11.5	150	10	50	153.3	473

はインプラントの機械的性質を改善するために、最適なレーザー照射条件について検討することを研究目的とした。

2. 実験方法

2.1 積層造形装置と積層条件

本研究で使用した積層造形装置の概略を図2に、実験条件を表1に示す。小スポット径レーザー照射装置には、ミヤチテクノス社製のYAGレーザーマーカ ML-7064A を使用した。レーザー出力は最大で50Wで、レーザースポット径は30~60 μm である。この装置はレーザー制御ユニットとレーザー走査ヘッドユニットで構成されており、ダイオードレーザー(LD)を励起光源とした、スキャニング方式のレーザーマーキング装置である。実験においてレーザーは連続発振とした。

積層用の金属粉末として最大粒径38 μm の工業用純チタン粉末を使用した。レーザー照射によるチタン粉末の急激な酸化・燃焼を防ぐために、加工スペース内の酸素濃度を0.1vol%未満のアルゴン雰囲気とした。

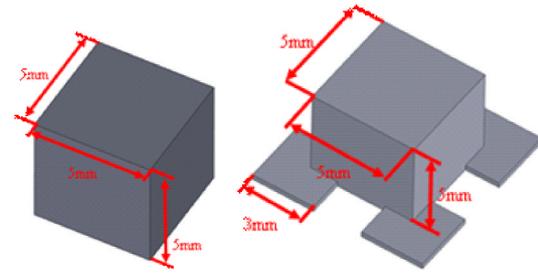
積層造形を行う上で加工条件を定量的に評価するためにエネルギー密度という指標を用いた³⁾。エネルギー密度 E は単位体積あたりに与えられる全エネルギー量であり (1) 式によって定義される。

$$E = \frac{P}{vst} \quad [\text{J}/\text{mm}^3] \quad \dots (1)$$

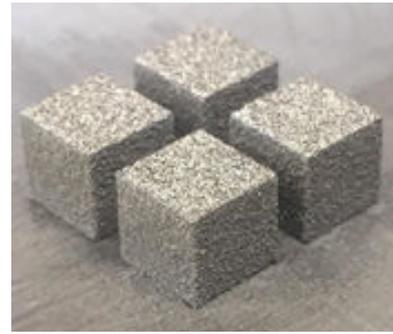
ここで、 P はレーザー出力[W]、 v は走査速度[mm/s]、 s は走査間隔[μm]、 t は積層厚さ[μm]である。

積層造形では高いエネルギー密度を用いた場合に、レーザー照射時の熱膨張とその後の急激な熱収縮により焼結物が反り返る問題が発生する。筆者らのこれまでの研究ではレーザーの走査方向を交互に変え、また積層ごとにその方向を直交方向に変えるなど、均一な加熱とし、反りの発生を抑制してきた。しかし、このような方法では限界があり、エネルギー密度 $25.9\text{J}/\text{mm}^3$ を超える照射条件ではそれが発生したため積層造形を行うことはできなかった。そこで、エネルギー密度 $25.9\text{J}/\text{mm}^3$ を超える加工条件では積層厚さが $300\mu\text{m}$ になるまで図3 (b) に示すような一片が3mmのサポートを試験片底面に設けることで、試験片最下層と土台との結合力を高め、反りの発生を抑制した。ところが、サポートの結合力にも限界があり、エネルギー密度が $77.7\text{J}/\text{mm}^3$ を超える加工条件ではサポート部が剥がれ、焼結物を製作できなかった。そこで、今回の実験ではエネルギー密度 $153.3\text{J}/\text{mm}^3$ の加工条件で行った実験に関しては、新たに積層造形機構を製作し、加工ユニット底面に内蔵したヒータを用いて試験片が接する底面を 473K に加熱した。

以上のレーザー照射条件を表1にまとめて示す。以下に示す実験結果は、同一条件下で行った6つの試験片の平均値である。



(a)試験片のサイズ (b)サポート材付



(c) 作製した試験片の外観

図3 試験片のサイズと試験片サポート

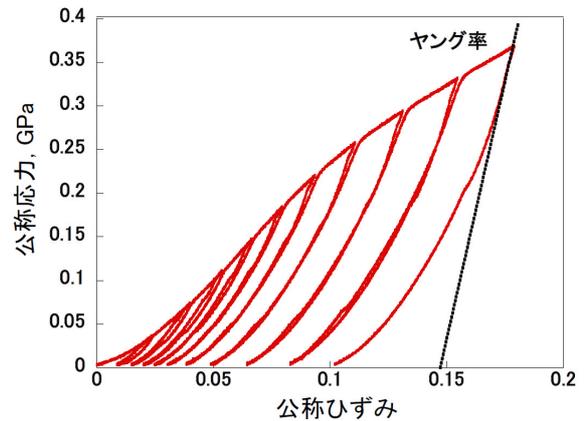


図4 試験片の圧縮試験概要

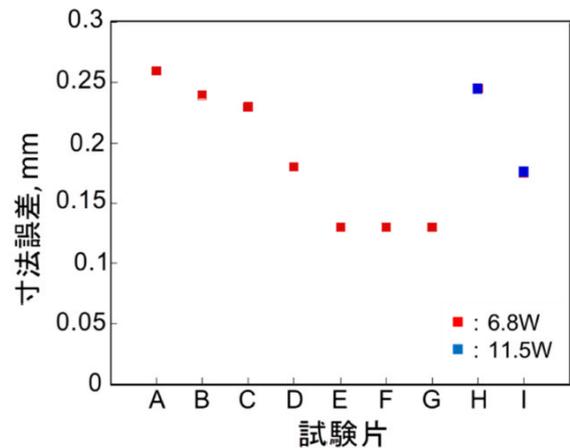


図5 焼結試験片の寸法御座

2.2 ヤング率の測定

ヤング率は万能材料試験機（島津製作所製，Auto-Graph AG-25TD）による圧縮試験によって求めた。図4には、公称応力-公称ひずみ線図の例を示す。圧縮試験では、まず1kNまで圧縮した後、0.1kNまで除荷した。次に2kNまで圧縮した後、0.1kNまで除荷した。この工程を10kNになるまで繰り返し。ヤング率は除荷開始後の10%のデータを用い、近似直線を作成し、その近似直線の傾きから算出した。

3. 実験結果

一般に、レーザの出力が上昇するのにしたがってレーザスポット径が拡大し、造形の精度が悪化すると考えられる。今回、6.8Wと11.5Wの二種類のレーザ出力を用いて実験を行った。レーザ出力による水平方向の寸法誤差の影響を比較するために、図5に各試験片の寸法誤差を示す。（図中のプロット点はそれぞれの試験条件により製作した4つの試験片の平均値である。）今回の実験ではレーザ出力6.8Wと11.5Wで製作した試験片の寸法誤差に明確な差は見られなかった。

エネルギー密度と充填率との関係を図6に示す。エネルギー密度の増加に伴い充填率は増加した。しかし、同一のエネルギー密度であっても充填率にはばらつきがみられた。

エネルギー密度 25.9 J/mm^3 の B, D, F, および 38.9 J/mm^3 の C, E, G のそれぞれにおいて、積層厚さを大きくした試験片において充填率が一番低くなり、走査ピッチを大きくした試験片において充填率が一番高いという結果となった。このことは、積層厚さ、走査速度、走査ピッチは式(1)にしたがえば同じ効果を焼結物に与えるように考えられるが、そうではないことを示している。焼結物の充填率に与える影響は、積層厚さが最も大きく、次いで走査速度、走査ピッチの順であることが判明した。

図7に、エネルギー密度とヤング率の関係を示す。エネルギー密度が上昇するにつれてヤング率も高くなる様子が分かる。図6の充填率と同様に、同一のエネルギー密度であってもヤング率にはばらつきが認められた。

図8に、充填率とヤング率の関係を示す。充填率とヤング率の間には明瞭な比例関係が存在することが分かる。エネルギー密度は、焼結物の強度を決めるためにある程度は指標になるが、この値をもとに焼結物の材料強度をまとめると多少のばらつきが生じた。しかし、充填率は焼結した試験片から測定しているために、この値をもとにヤング率を評価するとばらつきなしに評価できた。したがって、今後は充填率を評価することで、焼結物の機械的性質を評価できると思われる。

図9に、すべての焼結物試験片の垂直断面のSEM画像を示す。図9(a)~(c)に示すA, B, Cは積層厚さを変更した焼結物である。積層厚さが $50 \mu\text{m}$ ~ $150 \mu\text{m}$ と厚くなるにつれて、図9(c)に示すように積層間のTi粉末の溶け残りが多くなることを確認できる。これは、レーザ光が深さ方向に届きにくいことを示している。レーザ光が深いところに届くというより

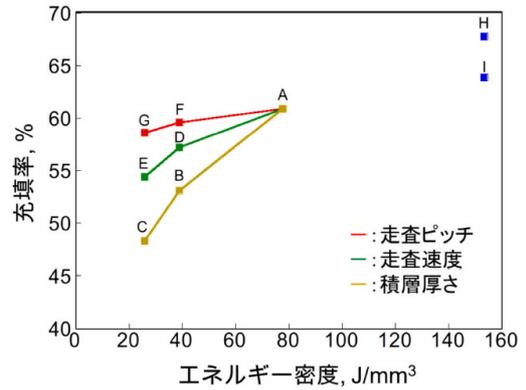


図6 焼結試験片の充填率

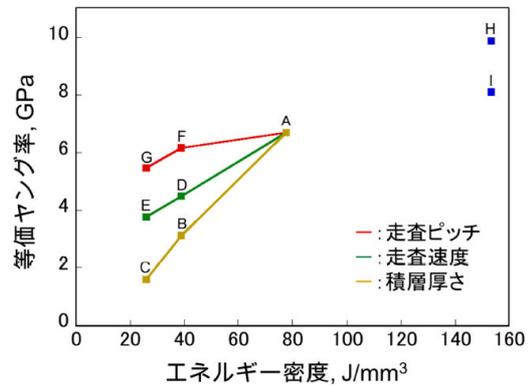


図7 焼結試験片の等価ヤング率

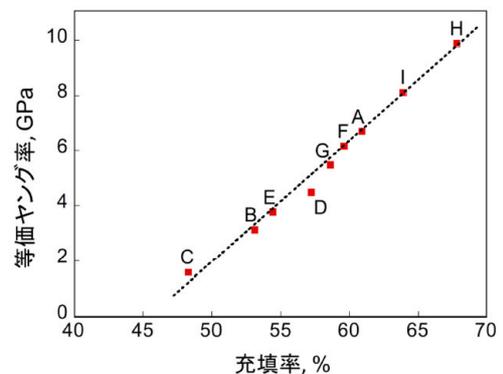
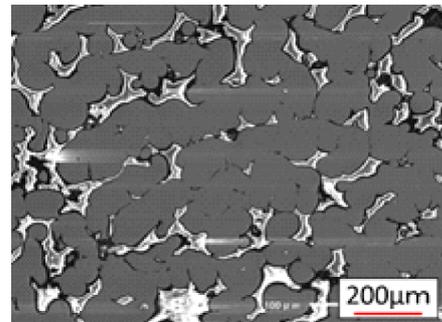


図8 等価ヤング率と充填率の関係



エネルギー密度： 77.7 J/mm^3 ，充填率：60.9%

(a) 試験片A

も、レーザー光が照射されている表面で生じた熱が下部に届くことでその部分の Ti 粉末が溶けるので、熱伝導の問題となっているように考えられる。図 9(d)~(e)は走査速度を変えたものである。走査速度が 150mm/s の図 9(e)では、原料 Ti 粉末のクラスタ凝集が十分でないように見える。これに対して走査速度が 100mm/s の図 9(d)では、図 9(e)に比べてクラスタが大きく成長している。走査速度が 50mm/s の図 9(a)では、クラスタの大きさは見かけ上図 9(d)のものと同じに見えるが、充填率では 3.7 ポイント上昇している。図 9(f)~(g)は走査ピッチを変化させたものであるが、走査ピッチは前 2 者の影響に比べて、小さいことが分かる。

図 9(h),(i)は、試験片株にヒータを取り付けて、レーザーの投入エネルギーを大きくできるようにしたものである。図 9(h)は最も高い充填率を示した焼結物である。クラスタの一つ一つが大きく、ネック部自体が大きいことが確認できる。

4. 考察

4.1 造形精度について

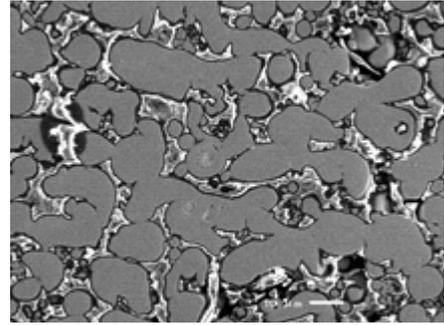
本研究では、後加工の必要がないインプラントの積層造形を目指している。したがって、造形精度は大きな評価項目となる。レーザーの出力に応じてレーザースポット径は変化する。しかし、本研究では造形精度の変化は確認できなかった。これは、レーザー出力の範囲が 6.8~11.5W とそれほど大きくなかったことが原因であると考えている。また、レーザー照射箇所周囲のチタン粉末が溶融してしまうが、その溶融範囲の再現性も良いので寸法精度が 0.13~0.26mm の間に入ったものと考えられる。このように、あらかじめレーザーのスポット径が焼結物の寸法誤差に及ぼす影響を把握しておくことができれば、寸法誤差を最小限にコントロールすることが可能となる。

また、インプラントに求められる精度は 500 μ m 程度までは許容範囲内という報告があり現在よりも大幅にレーザー出力を上昇させても、本研究で使用したレーザー加工機の最大スポット径が 100 μ m 程度であることから精度面においては十分な値を示すことが推察できる。

4.2 ヤング率について

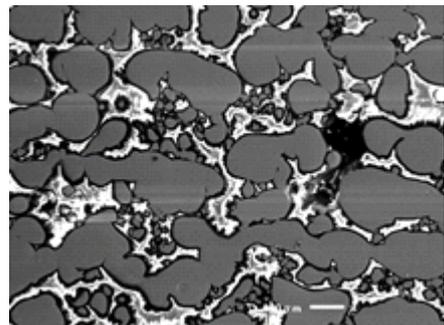
作製した試験片の等価ヤング率は最大で 9.88GPa であり、目標である自家骨のヤング率 10~30GPa をほぼ達成できた。ただし、自家骨のヤング率は部位や年齢、個人差等によって異なるため、部位によってはさらに等価ヤング率を高める必要がある。

袴田らは、スパーサー法により作製したポーラス金属の圧縮特性について研究を行っている⁴⁾。具体的には、圧縮強度は相対密度に依存し、圧縮強度の相対密度依存性は、相対密度の大小によって 3 つの領域に分けられる。空隙がない銅の降伏応力は 140MPa であるが、相対密度が 55~90% の中密度領域におけるポーラス銅の降伏応力は約 30~60MPa であると報告している。袴田らの研究では、中密度領域のポーラス銅において、空隙がない銅の約 20~40% の降伏強度を有して



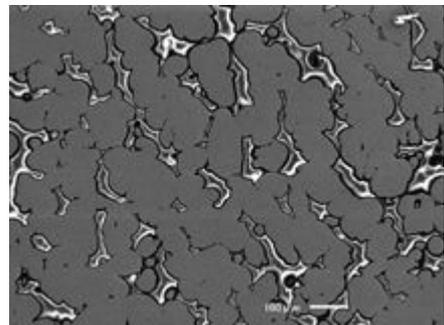
エネルギー密度：38.9J/mm³，充填率：53.1%

(b) 試験片 B



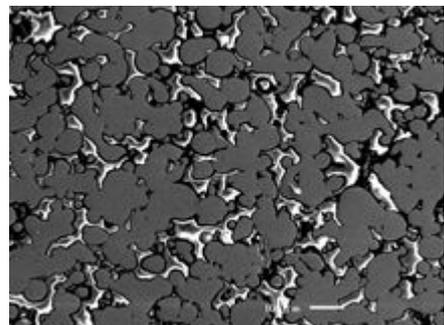
エネルギー密度：25.9J/mm³，充填率：48.3%

(c) 試験片 C



エネルギー密度：38.9J/mm³，充填率：57.2%

(d) 試験片 D



エネルギー密度：25.9J/mm³，充填率：54.4%

(e) 試験片 E

いる。本試験片の充填率は約 50~70%であり、この中密度領域に当てはまる。

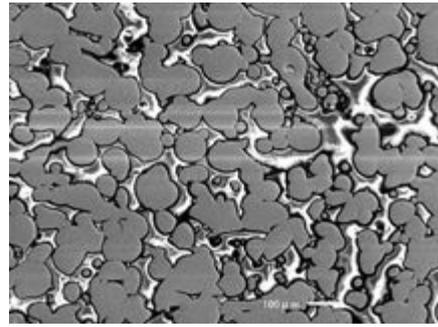
これに対して、本研究では純チタンのヤング率 106GPa に対して、約 1.5~9%の等価ヤング率であり、袴田らの研究に対して等価ヤング率が低すぎる結果となっている。この要因として、内部構造の違いが考えられる。スパーサー法により作製されたポーラス銅は空隙がそれぞれ独立して存在しており、大部分の金属は連続的な構造になっている。一方、本研究では、チタンは鉛直方向に不連続な構造を有しており、空隙割合が高い。そのため圧縮試験を行った場合、試験荷重の大部分はクラスタ同士のネック部ではなく、クラスタ同士の接触により支えていると考えられる。以上から、試験片の等価ヤング率を向上させるためには、試験片内部の空隙割合を減らし、鉛直方向に連続的な構造を持たせることが有効だと考えられる。

本研究で材料特性の基準としている試験片 A から積層厚さを 3 倍にした試験片 C は垂直断面の空隙割合が増加していることから、積層厚さを小さくすることが空隙割合の減少につながる。最小積層厚さは材料粉末の粒径によって決定されるため、積層可能な限界まで積層厚さを小さくするには、材料となる金属粒子をより細くすることが必要である。さらに走査速度を 3 倍にした試験片 E はクラスタの大きさが小さく、レーザ出力を 2 倍にした試験片 H はクラスタが大きくなっている。そこで、クラスタを大きくし、連続的な構造を持たせるためには走査速度を遅く、レーザ出力を高め、エネルギー密度を上げることが有効だと考えられる。走査速度を変更した試験片 G は基準としている試験片 A と大きな違いはみられなかった。横方向の溶融範囲はレーザスポット径とほぼ同じ約 100 μm であるが、スポット径以下の走査ピッチによる等価ヤング率の増大効果はみられなかった。そこで、試験片の作製時間短縮のために、走査ピッチはレーザスポット径と同程度の値に設定することが有効だと考えられる。

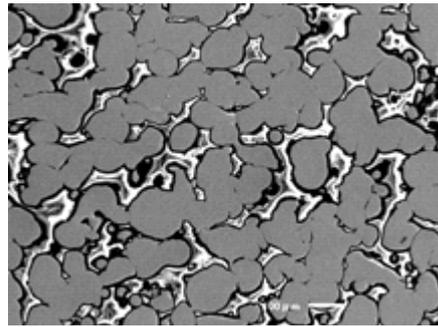
以上から、等価ヤング率を上げるための最適な焼結条件は、試験片内部の空隙割合を減らし、鉛直方向に連続的な構造を持たせるために、①積層厚さを小さくする ②走査速度を遅くする ③レーザ出力を上げる、この 3 点である。具体的には、本研究では使用している粉末は最大粒径 38 μm 、平均粒径 25 μm であり、最少積層厚さは 50 μm である。また、走査速度は 0.01~5000mm/s、レーザ出力は 50W まで設定できるため、現在よりもエネルギー密度が上がるように、この範囲でバランスよく設定する必要があると考えられる。

4.3 エネルギー密度について

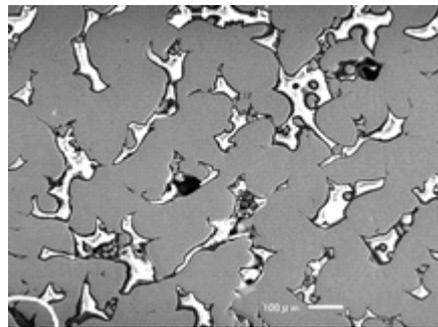
(1)式に示すエネルギー密度の式では、レーザ照射してから次のレーザ照射までの時間が考慮されていない。また、周囲の温度環境についても考慮されていない。そのため、同一のエネルギー密度であっても、実際には焼結状態が異なり、製作した焼結物が同様の特性を示さないという問題があったが、エネルギー密度に替わる新たな評価指標を考案することで、



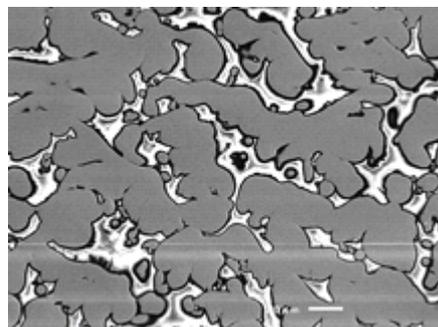
エネルギー密度：38.9J/mm³、充填率：59.6%
(f) 試験片 F



エネルギー密度：25.9J/mm³、充填率：58.6%
(g) 試験片 G



エネルギー密度：153.3J/mm³、充填率：67.8%
(h) 試験片 H



エネルギー密度：153.3J/mm³、充填率：63.9%
(i) 試験片 I

図9 各種焼結条件での試験片の断面

焼結する前に焼結物の特性をある程度把握することが可能となると考えられる。

一例として本研究の焼結条件をペクレ数で評価してみる。ペクレ数は熱源の移動速度と温度の移動速度の比を表す無次元量であり、(2)式により定まる。

$$Pe=ua/2\kappa \quad (2)$$

ここで、 u は熱源移動速度[m/s]、 a はスポット径半径[m]、 κ は熱拡散率[m²/s]である。本研究で用いたレーザのスポット径が約30 μ m、チタンの熱拡散率は9.25 $\times 10^{-6}$ m²/sなので、ペクレ数は走査速度50mm/sのとき約0.04であり、150mm/sのとき約0.12である。ともに $Pe < 1$ なので、静止熱源と考えることができる。すなわち、レーザスポットは一定速度で移動しているが、チタン中を伝わる温度の速度の方が速いということを意味している。しかし、この考察はチタンが溶製材との仮定のもので、粉末の場合は見かけの熱伝導率が低くなると考えられるので、さらに考察が必要である。

5. まとめ

本研究では、小スポット径レーザ加工装置を用いて製作された微細な内部構造を持つ焼結物のレーザ照射条件の4つのパラメータ（レーザ出力、積層厚さ、走査速度、走査ピッチ）を変化させることで積層造形物の機械的特性を向上させることを目的とした。

その基礎段階として、多孔質を有する5mm立方の焼結物を試験片として造形し、圧縮試験によりヤング率を算出した。また、焼結物の密度と断面をSEMで観察した。その結果以下の結論を得た。

- (1)焼結物の充填率が高くなるにつれてヤング率も向上し、ヤング率は最大9.88GPaの値を示した。この値は自家骨のヤング率と同程度の値であり、当初の研究目的を達成することができた。
- (2)積層厚さが試験片の機械的性質に及ぼす影響が最も大きい。その理由は、積層厚さと空隙割合には相関関係があり、また試験片内部の空隙は機械的性質に大きく影響しているためである。
- (3)最適なレーザ照射条件は以下の三点である。
 - ①空隙割合を減らすために、積層厚さを小さくする。
 - ②鉛直方向に連続的構造を持たせるために、レーザ出力と走査速度はエネルギー密度が増加するように変化させる。
 - ③レーザスポット径と同程度の走査ピッチに設定する。
- (4)レーザ出力6.8～11.5Wの範囲では、レーザ出力が焼結物の造形精度へ及ぼす影響はみられなかった。

本研究で用いたエネルギー密度式(1)では時間の因子が考慮できず、しかも加工面予熱を考慮することができない。このため、実験に置いては、式(1)で評価したエネルギー密度同

一の条件でも、焼結物の機械的特性が異なる結果になった。このことから、本研究で使用したエネルギー密度に代わる新たな評価指標が必要になる。

参考文献

1. 国立社会保障・人口問題研究所, 日本の将来推計人口 (平成24年1月推計)
2. 水谷正義, ナノパルスレーザによる骨組織適合型インプラントの創製, 平成23年度天野財団助成 AF-2011212.
3. A. Simchi, Direct laser sintering of metal powders, Mechanism, kinetics and microstructural features, Materials Science and Engineering A 428 (2006) pp.148-158.
4. 袴田, 馬淵: “スペーサー法による微細孔ポーラス金属の創製と特性評価”, 軽金属, 第62巻, 第8号(2012)313-321