

3次元レーザー積層造形による頸椎椎間板インプラント材の作製技術

新潟大学 自然科学系(工学部) 機械システム工学プログラム

教授 新田 勇

(平成 29 年度 一般研究開発助成 AF-2017211)

キーワード：レーザー積層造形，インプラント，低ヤング率

1. 研究の目的と背景

一般的な機械加工は切削や研削などの除去加工であるが、これとは逆の発想の付加加工 (AM: Additive Manufacturing) が行われるようになってきた¹⁻⁵⁾。これは、CAD データに基づき粉末材料を薄く積層することで、最終的に直接製品を製造するものである。金属粉末に高出力レーザー(200W~400W)を照射することでほぼ 100%密度の部品も製作可能となっている。この技術は、SLM (Selective Laser Melting) と呼ばれ、航空宇宙や自動車およびバイオ関係で既に実用化されている。特に、バイオインプラント製造では、患者固有の寸法に合わせて製造できることが期待されている。

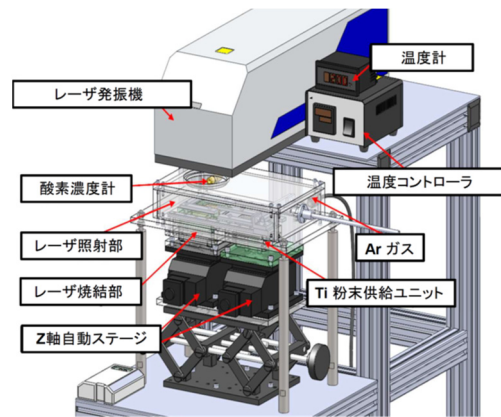
高齢者人口比率が高い我が国では⁶⁾、骨粗鬆症をはじめとする骨関節疾患の患者数が急激に増加しており、治療には人工物のインプラントが多く用いられる。インプラントに求められる機能は、(a)患部の複雑な3次元形状に対応できること、(b)骨との早期固定性が高いこと、(c)骨と機械的性質(ヤング率など)が近いこと、の3点が挙げられる。ここで、早期固定性向上のために、インプラント内部に微細構造を持ち、骨誘導を促すことも望まれる⁷⁾。AMは課題(a)には十分対応可能である。また、課題(b)と(c)に対応するために、ストラット構造で内部に多数の小さな空洞(0.5mm~1mm程度)を設けた構造にすることが精力的に研究されている⁸⁾。しかし、空洞を0.5mm以下にすることは難しく、ヤング率は高くても7GPa程度にとどまっている。

さて、金属の高いヤング率を低下させる別な方法として、焼結時に密度100%の緻密体とならないように、低出力レーザーを用いて焼結体充填率を下げられる。しかし、このような研究は現在のところほとんど行われていない。頸椎では過大な荷重が作用しないので、焼結体の充填率が低いインプラントでも適用可能と考えている。現在この椎間板インプラント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、また金属では高すぎるヤング率が応力遮蔽を引き起こす恐れもあるので、両者の中間の機械的性質を持つ、より良いものが求められている。

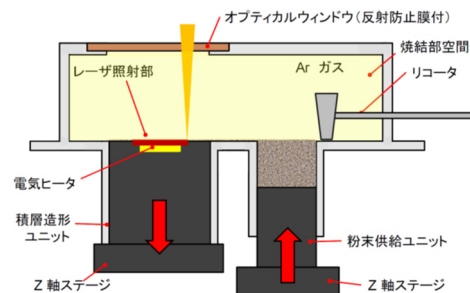
チタンのヤング率は100 GPa以上であるが、骨のそれは0.5~30 GPaである。そこで、チタン製インプラントを低出力レーザーによる多孔質体にするることによって造形物の等価ヤング率を骨のヤング率まで下げることが当面の目標である。本研究ではインプラントの機械的性質を改善するために、50Wレーザー照射装置を用いて最適なレーザー照射条件について検討を行った。

本研究成果については天田財団 FORM TECH REVIEW 2018 Vol.28 No.1に掲載したので、内容的には重複する部分があることをご告知願いたい。

2. 実験方法



(a) 装置外観



(b) 粉末供給部

図1 積層造形装置の概略

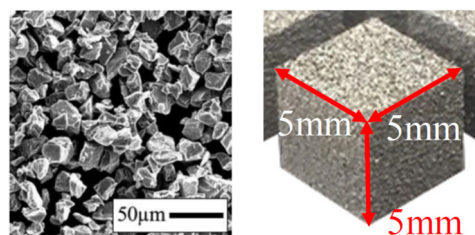


図2 純チタン粉末と積層造形物

2.1 試作した積層造形装置と積層条件

本研究では積層造形装置を自作した。その装置概略を図1に、積層条件を表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90µm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。

表 1 レーザ積層造形条件とエネルギー密度

試験片名	レーザー強度 P [W]	走査速度 v [mm/s]	走査ピッチ s [μ m]	積層厚さ t [μ m]	エネルギー密度 E [J/mm ³]	加工ユニット 温度 T [K]
A	6.8	50	35	50	77.7	-
B	6.8	50	70	50	38.9	-
C	6.8	50	105	50	25.9	-
D	6.8	100	35	50	38.9	-
E	6.8	150	35	50	25.9	-
F	6.8	50	35	100	38.9	-
G	6.8	50	35	150	25.9	-
H	11.5	50	30	50	153	473
I	21.9	50	35	50	250	473
J	30.1	50	35	50	344	473

積層用の金属粉末として最大粒径 38 μ m の工業用純チタン粉末を使用した (図 2)。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⁹⁾。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[μ m]、 t は積層厚さ[μ m]である。

エネルギー密度 153.3J/mm³の加工条件では、加工ユニット底面にヒータを設置して試験片が接する底面を 473K に加熱した。これは、熱ひずみで造形物が加工ユニットから剥がれるのを防止するためである。

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。

2.2 ヤング率の測定

等価ヤング率は万能材料試験機 (島津製作所社製, Auto-Graph AG-25TD) による圧縮試験によって求めた。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

図 2 に示すように造形物は 1 辺 5mm の立方体である。レーザー出力の上昇に伴いレーザースポット径が若干大きくなるので、その場合造形精度は悪化すると考えられる。今回は、6.8, 11.5, 21.9 および 30.1W のレーザー出力で焼結実験を行った。寸法誤差は造形物の幅を測定することで調べた。その結果、レーザー出力の増加に伴い若干造形精度が悪化しているが、寸法誤差は 0.45 mm 以内に収まっていた。インプラントの許容寸法精度は 0.5mm といわれている¹⁰⁾ので、焼結後の後加工なしで製品化できると思われる。

図 3 にエネルギー密度と充填率との関係を示す。エネルギー密度の増加に伴い充填率は増加している。なお、この

図で H-, H+の標記は、H のエネルギー密度を若干増減させたものである。I-についても同様である。最も高い充填率は造形物 J の 75.6 %であり、逆に最も低いのは造形物 G の 48.9 %である。造形物 A のエネルギー密度を基準とすると、それより大きなエネルギー密度 H, I, J の場合は、エネルギー密度と充填率の関係は線形である。また、造形物 A より低いエネルギー密度の領域では、同一のエネルギー密度であっても、積層厚さが充填率に与える影響が最も強く、次いで走査速度、走査ピッチの順である。

図 4 に等価ヤング率と圧縮試験荷重の関係を示す。圧縮荷重の増加に伴い、等価ヤング率が上昇している。これ

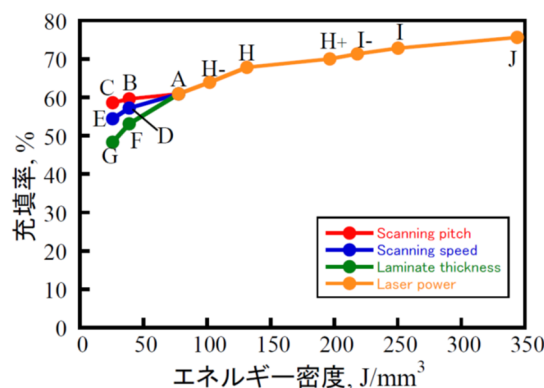


図 3 エネルギー密度と充填率の関係

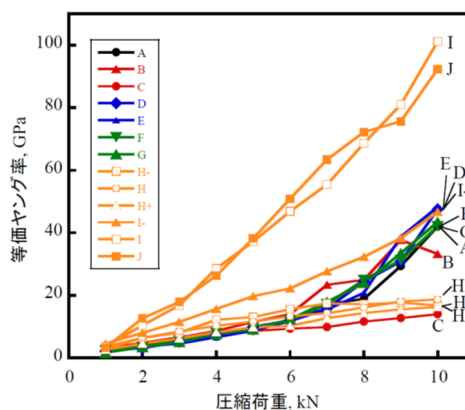


図 4 等価ヤング率と圧縮試験荷重の関係

は造形物内の空隙がつぶれクラスタ同士が接触を開始することが原因と考えられる。造形物 I に 10kN を加えたときに、最大 101GPa の等価ヤング率が得られた。造形物 I, J は圧縮試験初期から等価ヤング率が大きく上昇している。エネルギー密度 25.9~77.7 J/mm³ の造形物の多くは圧縮荷重 7kN 以降に等価ヤング率が増加し、約 50 GPa に達している。これに対して、中間のエネルギー密度 102~196 J/mm³ の造形物 H-, H, H+は、圧縮荷重 7 kN 以降も等価ヤング率の増加は見られず、約 18 GPa にとどまっている。

エネルギー密度が高い造形物でも、圧縮荷重を加える前の等価ヤング率は 10GPa を下回る低い値を示した。この理由の一つには、造形したままの試験片を使っているため、圧縮試験のジグと接触する造形物の表面粗さが影響を及ぼしていることが考えられる。造形物表面の上下面を機械加工して平面出しを行ってから圧縮試験を行えば、低圧縮荷重域でエネルギー密度が高い造形物のヤング率が高く出る可能性はある。

図 5 に、充填率と 10 kN 負荷時の等価ヤング率の関係を示す。充填率と等価ヤング率の関係はやや複雑であることが分かる。しかし、両者には比例関係が存在し、エネルギー密度 64~72 J/mm³ のときに、等価ヤング率が予想に反して大きくならないと見ることもできる。

図 6 に、造形物の上面と垂直断面の SEM 画像を示す。エネルギー密度（4つのパラメータ）ごとに焼結状態と内部構造に違いが見られたので、パラメータごとに考察する。

図 6(a),(b)に基準造形物 A を示す。平均粒径 25 μm の粉末が 4~8 個程度合体して 100~200 μm の粒径のクラスタになっていることが分かる。

図 6(c),(d)に走査ピッチを 3 倍にした造形物 C を示す。走査ピッチが大きくなると、粒子径の小さいクラスタが増加し、クラスタ間のすきまも増加することが分かる。走査ピッチ 105 μm の造形物 C では直接レーザー照射されない部分が生じることから、粉末溶融があまり進行しないためにクラスタの粒子径が小さくなったと考えられる。

図 6(e),(f)は走査速度を 3 倍にした造形物 E である。造形物 A の粒子径約 100~200 μm に対して、造形物 E の粒子径は約 80 μm と小さなクラスタが多い。走査速度が増加し、粉末にレーザーが照射される時間が短くなったことが原因である。

図 6(g), (h)に示す積層厚さを 3 倍にした造形物 G は、クラスタの粒子径が大きく、積層方向に焼結が繋がっている。

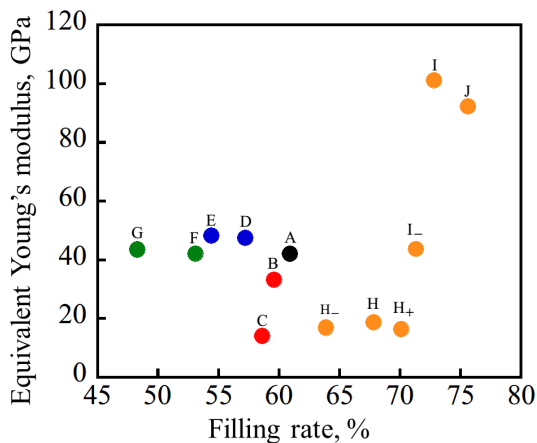


図 5 圧縮荷重 10kN 時の等価ヤング率と充填率の関係

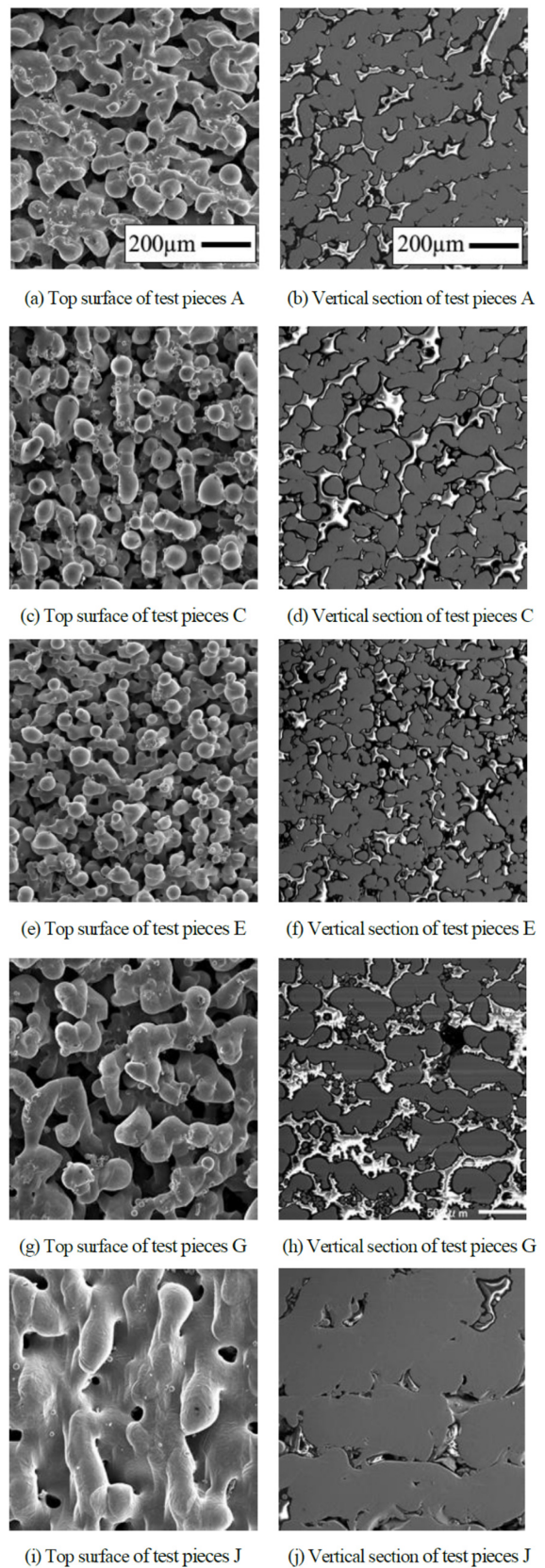


図 6 種々の条件で積層造形された試験片の上面組織と断面組織の SEM 観察像

と断面組織の SEM 観察像

の様子を確認できる。積層厚さを増加させたことで、一層分の粉末量が増加する。そのため、積層深さ方向の溶融が進み、多くの粉末が凝集されたことでクラスタの粒子径が大きくなったと考えられる。その一方で、大きな空隙も現れている。これは、粉末の供給量が決まっていることが原因ではないかと考えている。

これまで比較した造形物 C, E, G は図 3 のエネルギー密度が最も低い 25.9 J/mm³ と同一の条件のものである。エネルギー密度は同一の値であるが、パラメータによって充填率が異なることが分かる。したがって、式(1)は修正する余地があると考えられる。

図 6(i),(j) のレーザ出力 30.1W の造形物 J では、約 200~300 μm に肥大したクラスタがレーザ走査方向に連続的に連なっている。レーザ出力を増加させると積層深さ方向とレーザ走査方向共に溶融範囲が拡大する。それにより、クラスタ同士の焼結融合が活発になることで連続的な焼結が進み、緻密な構造となっている。

4. 圧縮荷重と等価ヤング率の関係

袴田らはポーラス金属の研究を行い、圧縮強度や降伏応力は相対密度(充填率)に依存するとしている¹¹⁾。しかし、図 5 より本研究で作製した造形物の充填率と等価ヤング率には強い相関は見られなかった。袴田らのスプレーサー法により作製されたポーラス金属はその製法から空隙が独立しているのに対して、本研究で作製した造形物は空隙が不規則に連なっている。両者のこのような構造上の違いが変形特性に現れたものと考えられる。

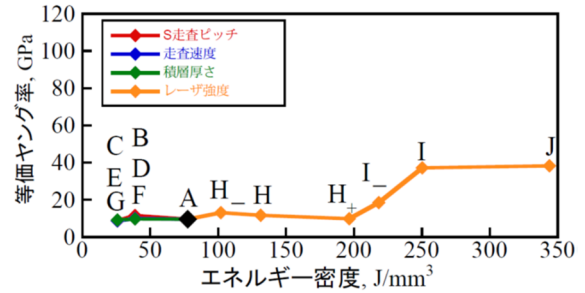
図 7 には等価ヤング率とエネルギー密度の関係を、2つの圧縮試験荷重について示した。これより、等価ヤング率はエネルギー密度、①25.9~77.7 J/mm³、②102~218 J/mm³、③250~344 J/mm³の3つに分類できる。

エネルギー密度が①の領域で作製された造形物は、レーザ出力が 6.8W で共通であり、造形物 A の充填率が最も高い。図 8 には造形物 E の圧縮前後の垂直断面画像と二値化画像(白い部分がクラスタで、黒い部分は空隙)を示す。これより、圧縮前は充填率 59.2%と空隙が多いが、クラスタのネック部強度が弱いため、圧縮によってネック部が塑性変形し、緻密化(充填率 75.6%)されていることが分かる。したがって、エネルギー密度①における等価ヤング率の上昇は、圧縮による造形物内部の緻密化によるものと考えられる。図 11(a)において造形物 A 以下のエネルギー密度ではヤング率が 10 GPa 以下であるのに対して、圧縮荷重 10kN を加えた図 11(b)において 40 GPa に上昇したのは、この機構による。

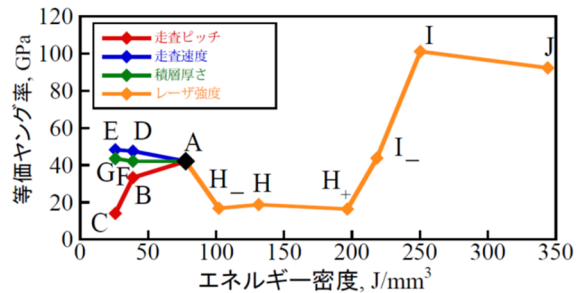
エネルギー密度②の領域で作製された造形物は、エネルギー密度を増加させたことで領域①に比べてクラスタとネックが成長している。主にネック部の強度が増加したことで 10kN の圧縮ではクラスタの緻密化がそれほど進まないと考えられる。

エネルギー密度③の領域で作製された造形物は図 6(i),(j) の組織写真から分かるように、肥大化したクラスタが連続的に焼結されており、空隙も少なくなっている。したがって、焼結した段階でかなりの緻密体となっているため、高いヤング率を示したと考えられる。また、これらの肥大化したクラスタは、圧縮荷重を受けることで容易に接触を開始するので、ヤング率はますます母材の値に近づくことになる。

5. 圧縮荷重と等価ヤング率の関係



(a) 試験荷重 5 kN



(b) 試験荷重 10 kN

図 7 試験荷重 5 kN と 10 kN の時の等価ヤング率とエネルギー密度の関係

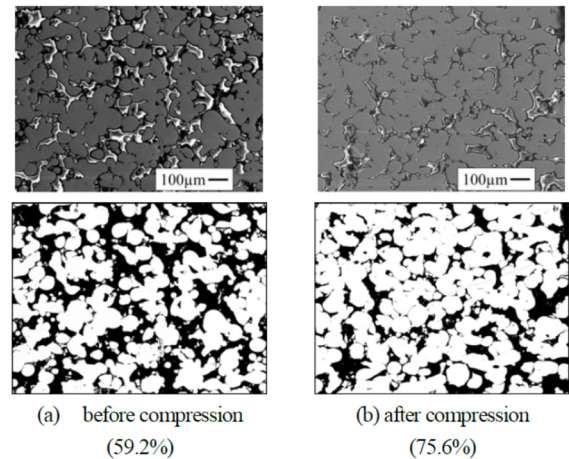


図 8 造形物 E の圧縮試験前後の断面組織

「1. 研究の目的と背景」で述べたが、SLM で密度 100% の造形物は作製できるが、ヤング率は高いままである。ヤング率を下げるためには、ストラット構造にするしかなく現在はこの方法がとられている。このような構造に対して Ashby-Gibson¹²⁾によってヤング率と充填率(相対密度)の関係が式(2)のように求められている。

$$\frac{E^*}{E_s} = \left(\frac{\rho^*}{\rho_s}\right)^2 \dots (2)$$

ここで、 E^* :ポーラス材料のヤング率、 E_s :緻密材のヤング率、 ρ^* :ポーラス材料の密度、 ρ_s :緻密材の密度

Ashby らのモデルは、図 9 の中に示したように、エッジと呼ばれている梁で構成されている。エッジの中央のノードに荷重が作用したときの梁のたわみから式(2)を導出した。本研究の結果と式(2)の計算値を示したのが図 9 となる。計算値は実験値と近いところもあるが、レーザ強度を変化させたものに対しては、64~70%の充填率ではヤング率は計算値の値よりも小さく (H-, H, H+), それ以上の充填率では逆に計算値よりもかなり値が大きいく (I, J) になっている。このようになるのは Ashby-Gibson で仮定している構造と、本研究の構造が異なっているからだと考えられる。

エネルギー密度が 100~200 J/mm³ のところ (H-, H, H+) で、ヤング率が低下する現象を考えると、構造ではなくて金属組織が変化しているとも考えられる。純チタンは 885℃で相変態を起こして、α相の稠密六方格子(hcp)からβ相の体心立方格子(bcc)となる。レーザ照射により加熱急冷されることにより、室温状態でも体心立方格子となってしまう、ヤング率が低くなった可能性も考えられる。そこで、造形条件の異なる 3 つの試験片について EBSD 分析を行った。結果を図 10 に示す。相分布を見ると、3 つの造形条件で赤色であることが分かる。すなわちすべてα相でありβ相は存在していない。したがって、エネルギー密度が 100~200 J/mm³ のところでのヤング率低下には、相変態の影響はないことが分かった。

6. まとめ

SLM では、レーザの高出力 (200W~400W) 化のために、ほぼ 100%の密度のものも製作可能となっている。これは、高い強度を求める要望にそっているのが好ましいことである。しかし、緻密体のためにヤング率は溶製材と同じ値になってしまう。

インプラントには、応力遮蔽を防止する理由から、骨と同等のヤング率が望まれる。低出力レーザを用いると微細な内部構造を持つ造形物が作製できるので、焼結時点で骨と同等のヤング率をもつ造形物とすることができる。本研究ではこのことを確かめるために、30W 以下の低出力レーザを用いて、5 mm 立方の造形物を作製し、圧縮試験により等価ヤング率を算出した。また、造形物の密度と断面を SEM で観察した。その結果以下の結論を得た。

- (1)造形条件を適切に設定すれば、骨と同等の等価ヤング率を持つ造形物を作製することができる。
- (2)造形後に加圧により若干の変形を加えることにより、焼結物のヤング率を望む値に変更できる。
- (3)エネルギー密度 H の造形条件では、圧縮試験荷重にかかわらず、等価ヤング率はほとんど変化することなしに推移した。
- (4)レーザ出力 6.8~30W の範囲では、焼結物の造形精度は 0.5mm 以内である。
- (5)低ヤング率化に組織の相変態は関係していない。

今回の低出力レーザ積層造形では、結言(3)のような特異的な材料特性を有するものを作製することができた。インプラント材に適用した場合、人工関節のステムなど髄内に圧入するような時でも、変形しやすくしかも骨と同程度のヤング率を示す材料として有効に使用できる可能性が考えられる。

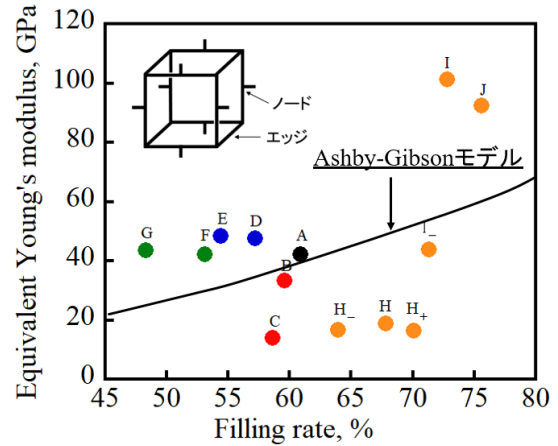


図 9 Ashby-Gibson モデル¹²⁾との比較

	条件A	条件H	条件I
反射電子像 x y 100μm			
相分布			
IPFマップ (Z方向) 0010 1120 0110			

図 10 試験荷重 5 kN と 10 kN の時の等価ヤング率とエネルギー密度の関係

謝辞

本研究は、公益財団法人天田財団からの一般研究開発助成により実施した研究に基づいていることを付記するとともに、同財団に感謝いたします。

参考文献

- 1) 京極秀樹：金属 3D プリンタの開発動向と今後の展開，近畿大学次世代基盤技術研究所報告，5 (2014)，139-143.
- 2) J.-P. Kruth, G. Levy, F. Klocke, T.H.C. Childs: Consolidation phenomena in laser and powder-bed based layered manufacturing, CIRP Annals, 56-2, (2007), 730-759.
- 3) N. Guo, M.C. Leu: Additive manufacturing: technology, applications and research needs, Frontiers of Mechanical Engineering, 8-3 (2013), 215-243.
- 4) J. Parthasarathy, B. Starly, S. Raman, A. Christensen: Mechanical evaluation of porous titanium (Ti6Al4V) structures with electron beam

- melting (EBM), *Journal of the mechanical behavior of medical materials*, 3 (2010), 249–259.
- 5) A. Cheng, A. Humayun, D.J. Cohen, B.D. Boyan, Z. Schwartz: Additively manufactured 3D porous Ti-6Al-4V constructs mimic trabecular bone structure and regulate osteoblast proliferation, differentiation and local factor production in a porosity and surface roughness dependent manner, *Biofabrication*, 6 (2014), 045007 (12pp).
 - 6) 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）.
 - 7) L.E. Murr, S.M. Gaytan, F. Medina, H. Lopez, E. Martinez, B.I. Machado, D.H. Hernandez, L. Martinez, M.I. Lopez, R.B. Wicker, J. Bracke: Next-generation biomedical implants using additive manufacturing of complex, cellular and functional mesh arrays: *Philosophical Transactions of the Royal Society A Mathematical Physical and Engineering Sciences*, 368 (2010), 1999–2032.
 - 8) Editorial review article: Mechanics of additively manufactured biomaterials, *Journal of the Mechanical Behavior of Biomedical Materials*, 70 (2017), 1–6.
 - 9) A. Simchi: Direct laser sintering of metal powders, Mechanism, kinetics and microstructural features, *Materials Science and Engineering A*, 428 (2006), 148–158.
 - 10) 平成25年度「次世代医療機器評価指標検討会（厚生労働省）」三次元積層インプラント分野審査WG報告書，平成26年3月，審査WG座長 吉川 秀樹.
 - 11) 袴田昌高，馬淵守：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*，62–8 (2012), 313–321.
 - 12) Gibson, L.J., Ashby, M.F., 1988. *Cellular Solids: Structure and Properties*, second ed. Cambridge University Press, Cambridge, pp. 429–452.