

Ti ball이 coating된 임플란트 core의 제조

최동진 · 박동기 · 박성범 · 박승식 · 파코드 뚜라예프 · 노재승
김성진[†] · 우흥식* · 김승언** · 이준희***

금오공과대학교 신소재시스템공학부

*동국대학교 안전환경시스템공학과

**한국기계연구원 부설 재료연구소

***동아대학교 신소재공학과

The Fabrication of Implant Core Coated with Ti Balls

D. J. Choi, D. G. Park, S. B. Park, S. S. Park, F. R. Turaev,
J. S. Roh, S. J. Kim[†], H. S. Woo*, S. E. Kim**, J. H. Lee***

Department of Information and Nano Materials, Kumoh National Institute of Technology, Gumi 730-918, Korea

*Department of Safety Environment Systems Engineering, Dongguk University, Gyeongju 780-714, Korea

**Korea Institute of Materials Science, Changwon 641-010, Korea

***Department of Advanced Materials Engineering, DongA University, Busan 604-714, Korea

Abstract The implant prototypes with various porosities were fabricated by Spark Plasma Sintering of atomized spherical titanium balls. The interface was observed by optical microscope. Sintering temperature and holding time were selected at the point of big change of Z-axis ratio during sintering. These experiments show that Spark Plasma Sintering of spherical titanium balls can be efficiently used to produce implants surfaced with titanium balls with various porosities in a short time less than 120 seconds by manipulating the current condition such as z-axis, temperature and balls size.

(Received February 18, 2008; accepted March 7, 2008)

Key word: Implant, SPS(Spark Plasma Sintering), Titanium ball, Implant core

1. 서 론

티타늄은 생체적합성이 뛰어나 주위 조직에 대해 양호한 친화성을 보일 뿐 아니라, 부식에 대한 저항이 크고 생체에 대한 독성이 거의 없는 것으로 알려져 있다. 이러한 티타늄의 생체 적합성은 안정된 부동태 피막이 생체와 이루는 계면이 골유착에 중요하다고 보고되고 있으며, 티타늄은 넓은 면적을 갖는 임플란트에 가장 적합한 재료로 알려져 있다. 임플란트란 상실된 자연치아의 대체로서 치아의 머리부터 뿌리까지 만들어진 인공치아를 골 내에 매식함으로써 주위의 자연 치아에 손상을 주지 않으면서 본래의 치아 기능 및 심미성을 복원한 것을 말한다.

인체의 면역기구는 생체에 들어오는 금속 등에 면역반응(Foreign body reaction)에 의해 연조직이 금

속을 둘러싸게 된다고 알려져 있다. 그러나 Branemark 등[1]의 연구에 의하면 티타늄의 주위에는 연조직의 개재없이 골 조직이 직접 접촉하는 것으로 보고되고 있다.

현재 시판되는 치과용 임플란트는 표면적을 증가시키는 방법으로서 다양한 입자를 이용한 blasting, acid etching, plasma spray 등이 있으며, 이러한 방법의 의해 제조된 임플란트들은 다양한 표면거칠기를 가지고 있어 골 접촉 면적이 증가되어 골과의 유착성을 향상시키고 있다. Deligianni 등[2]은 매끄러운 표면에 비해 표면이 거친 티타늄의 경우가 세포 부착 및 증식에 유리하다고 보고하였으며, Schwart 등[3]도 임플란트의 표면 거칠기는 골아세포 증식, 분화 및 골기질 형성을 변화시키며, 표면 거칠기가 클수록 골유착이 향상된다고 보고하였다.

[†]E-mail : sjghim@kumoh.ac.kr

임플란트 가공 방법으로 기계가공을 통해 표면에 나사산을 만들어 표면적을 극대화시킨 screw-type 임플란트가 현재 주류를 이루고 있다. 임플란트 나사산은 뼈와 직접적으로 접촉함으로써 더 강한 기계적 접촉강도의 효과를 제공하며 아울러 치유기간동안 초기 고정력을 향상시켜 준다. 그러나 임플란트의 초기 고정력은 screw-type 임플란트 보다 표면적이 훨씬 넓은 다공성일 때 더욱 향상되며 그에 따라 치유기간을 절반으로 단축시킬 수 있다는 연구결과들이 꾸준히 보고되고 있다[4, 5, 6]. 다공성 임플란트(Porous-layered implant)는 기계가공된 screw-type의 임플란트 표면보다 같은 길이에서 3-4배 정도 표면적이 넓으며 또한 3차원적 기계적 결합 및 골유착을 보여주고 있어 제 4세대 임플란트로 주목받고 있다.

일반적으로 다공성 표면을 갖는 임플란트는 막대모양의 바(Implant core)에 금속분말을 접착시켜 불활성 분위기에서 소결하는 방법과 plasma spray 방법으로 얇게 도포한 후 고온소결시키는 방법 등이 있다. 특히 Ti 같이 반응성이 높은 재료는 불활성 기체 분위기에서 소결시켜야만 한다. 이러한 소결법은 최소한의 온도와 짧은 시간으로 미세조직 및 기계적 성질에 변화를 주지 않고도 다공성의 임플란트를 제조할 수 있는 장점이 있다. 임플란트 코어 및 구형으로 된 Ti ball 미립자를 흑연몰드에 채워 넣은 후 일정한 압력과 높은 전압-전류 밀도를 갖는 전기 에너지로 통전시켜 다공성 임플란트가 생성되기 위한 최소한의 온도와 시간으로 임플란트를 제조할 수 있는 SPS(Spark Plasma Sintering)법은 다른 소결법과는 달리 소재자체의 미세구조를 변화시키지 않고 고유의 기계적 강도를 유지할 수 있어 차세대 다공성 임플란트 제조공법으로의 응용 가능성이 커지고 있다.

본 연구에서는 SPS 장비를 사용하여 장시간 높은 온도에서 수행되는 소결공정의 문제점을 해결하기 위하여 구형의 Ti ball을 점접촉이 가능하도록 2분 이내의 짧은 시간에 방전소결을 하여 다공성 표면을 갖는 Ti ball이 코팅된 코어를 갖는 임플란트를 제조하였으며, 입자의 크기에 따라서 다양한 온도 조건을 변화시킴으로써 다양한 기공도를 갖는 임플란트를 제조하고자 하였다.

제조된 서로 다른 임플란트 샘플의 경도를 측정하

였으며, 방전 시간에 따른 온도-전류의 함수와 온도에 따른 Z-axis의 수축율의 변화를 관찰하였다. 또한 기본적인 물성으로서 임플란트 코어의 성질 및 그 크기, ball과 ball사이의 neck 크기, 그리고 기공도의 변화를 관찰하였으며, SEM 및 광학현미경을 이용하여 다공성 임플란트의 미세조직을 관찰하였다.

2. 실험방법

2.1 Ti ball의 준비

Rotating electrode 공법으로 제조된 미립자의 Ti 구형분말(Fluka Chemie AG)을 이용하여 실험하였다. 이 ball은 평균입도 90 μm 급과 평균입도 125 μm 급의 두가지를 사용하였으며, 선별된 분말은 건조기에서 100°C, 2시간 건조시켜 모든 수분을 제거한 후 실험에 사용하였다.

2.2 Ball의 충전 및 소결

전체 직경이 15 mm, 위와 아래의 내경이 각각 4.0 mm, 3.3 mm로 되어 있는 흑연 몰드의 중앙에 임플란트 core를 장입하고, 분별된 크기의 ball을 각각 칭량하여 0.7 g을 주입한 후 vibrator를 이용하여 ball이 충분히 임플란트 코어 둘레에 잘 충전될 수 있도록 하였다. 소결은 SPS(Model SPS-1050, Sumitomo Coal Mining Co., Ltd Kanagawa, Japan) 장비를 이용하여 10kN의 하중을 가하고, 소결분위기는 챔버 내에 Ar(96%) + H₂(4%) 혼합가스를 장입하여 조절하였다.

소결은 위에서 언급한 각각의 크기의 ball 입자에 온도를 변수로 두고, 이상적인 가공도를 얻기 위해 2분간의 소결시간과 점접촉이 가능한 최소한의 온도로서 900°C와 1150°C를 실험 조건으로 설정하고, 전류증가 속도는 200 A/min 씩으로 하였다.

전반적인 Ti 임플란트 제조 공정흐름도는 Fig. 1에 나타낸 것과 같으며, Fig. 2와 Fig. 3에 챔버 내의 ball이 충전된 흑연 몰드의 형상, 치수 및 조립도를 각각 나타냈다.

2.3 소결체의 분석 및 평가

상기와 같은 방법으로 제조된 임플란트 샘플을 입자와 입자 사이의 neck 크기, 그리고 다양한 소결

조건에 따라 임플란트의 표면 상태가 어떻게 변화하는지 조사하기 위해 각각 2 mm씩 절단하여 SEM(Model S-2400, Hitachi, Ltd., Tokyo, Japan) 및 광학현미경으로 단면을 관찰하였다. 또한 선별된 임플란트의 기공율은 각각 아르키메데스(Archimedes principle)법을 이용하여 측정하였으며, 각 소결 조건에 따른 임플란트의 기공 부피를 비교 분석하였다.

또한 임플란트 표면에 소결된 각각의 임플란트 표면에 TiO₂ 부동태 피막이 형성되었는지 알아보기 위하여 EDS로 표면 성분을 측정하였으며, 모든 데이터는 input energy 그리고 소결하는 동안의 온도와 비교 분석하였다.

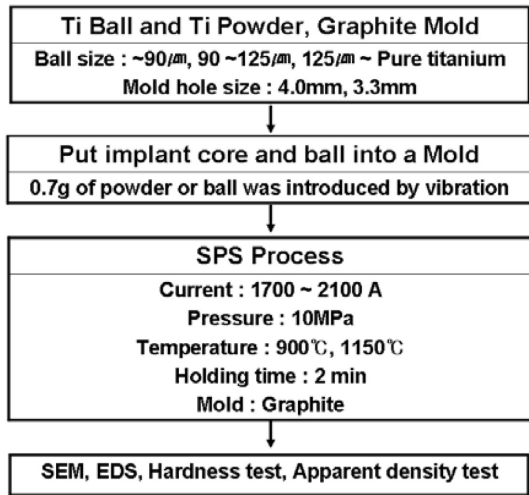


Fig. 1. Flow Diagram of experimental procedure.

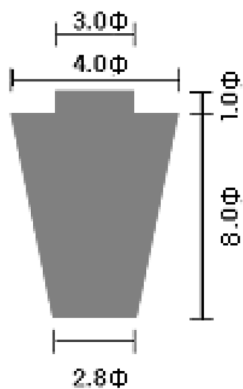


Fig. 2. Dimension of implant core and graphite mold.

3. 실험결과 및 고찰

3.1 물성평가

3.1.1 온도 수축율

소결에서 가장 큰 영향을 미치는 변수는 온도이다. 입자의 크기와 종류에 따라서 온도를 달리하였다. 입자크기가 큰 것(125 µm 급)은 1150°C에서 소결하였고, 작은 것(90 µm 급)은 950°C에서 소결하여 큰 입자에 비하여 낮은 온도로 설정하였다. 이는 입자가

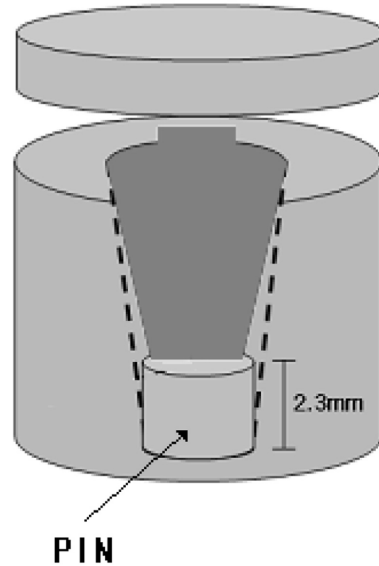
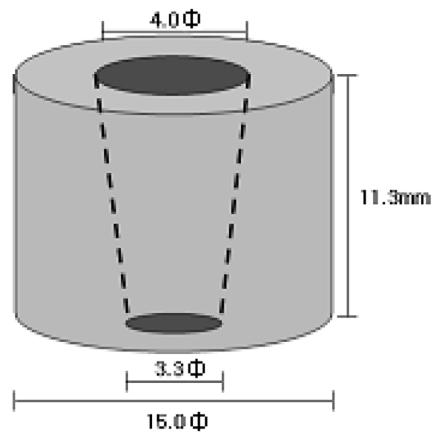


Fig. 3. Insertion of Ti implant core and graphite pin into graphite mold.



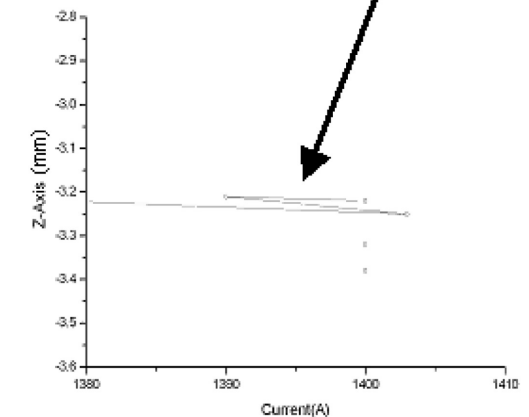
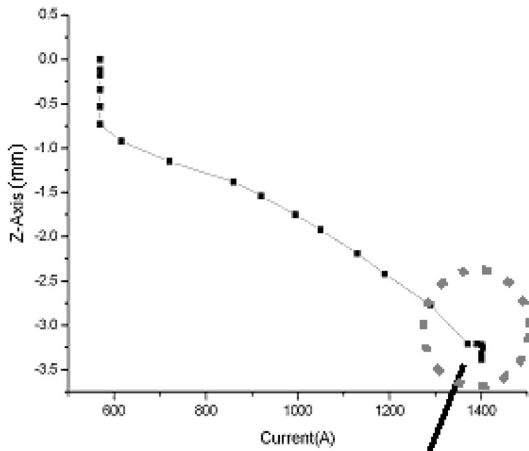


Fig. 4. Relation of variation of Z-axis versus applied current during sintering.

작을수록 큰 ball에 비해 입자간의 접촉점이 많으므로 넥킹 현상이 쉽게 일어나 소결이 촉진될 수 있기 때문에 작은 ball의 경우 큰 ball에 비해 낮은 온도에서도 같은 소결 효과를 기대할 수 있으며, 본 소결의 목적이 입자간의 완전소결이 목적이 아니고 입자간의 점접촉을 발생시켜 최대한의 기공도를 얻고자 하였으므로 설정 온도의 차별은 적합한 것으로 예상되었다.

또한, 입자와 입자사이의 점접촉을 효과적으로 발생시키기 위하여 소결온도를 가능한 높이고 소결시간을 최소한으로 줄이고자 하였다. 이와 같이 소결이

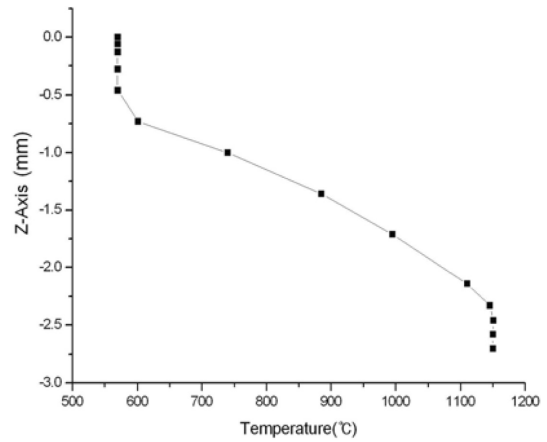


Fig. 5. Expansion-shrinking graph of Ti balls(125 μm) during sintering to 1150°C.

온도와 밀접한 관계를 갖는 것은 아래의 식에서와 같이 소결을 좌우하는 P_ϕ , η 및 D 가 온도에 지수적으로 의존하기 때문이다[7].

$$P_\phi = A \exp(-Q/kT) : \text{증발-응축 기구}$$

$$\eta = \eta_0 \exp(Q/kT) : \text{점성유동 기구}$$

$$D = D_0 \exp(-Q/kT) : \text{고상확산 기구}$$

소결시의 하나의 예인 Fig. 4에서 보는 바와 같이 팽창을 하다가 1400 A에서 수축이 일어나는 것을 볼 수 있다. 일반적으로 팽창에서 수축으로 바뀌는 단계가 점접촉이 발생하는 단계로 예상되며 이때 보통 소결수축은 3-5%로 예상된다. 입자와 입자사이의 점접촉 소결은 구동력이 크고 물질 이동거리가 짧기 때문에 빨리 일어나게 된다. 이때 이렇게 소결이 촉진되게 되면, 입자와 입자 사이가 접근되어 소결수축이 일어난다.

과다한 소결이 되는 것을 방지하기 위해서 수축이 일어나기 전에, 즉 팽창이 진행되는 속도가 줄어들 때의 온도를 입자와 입자가 점접촉 하는 온도로 예측하고 온도구간을 입자크기와 종류에 따라서 950°C와 1150°C로 온도를 설정하였다. 다음 Fig. 5와 Fig. 6은 수축이 일어나기 전에, 즉 팽창되는 속도가 서서히 줄어드는 시간에 소결을 멈추어 적절한 점접촉을 발생하도록 하였다. 다양하고 많은 실험을 통하여 이상적인 점접촉 시간을 구하고자 하였다.

3.1.2 유지시간의 선정

앞에서도 언급했듯이 이상적인 점접촉을 갖기 위한

임플란트의 최소 소결시간을 정하기 위한 실험을 진행하였다. 우선 어떤 임의의 온도로 유지하고 싶을

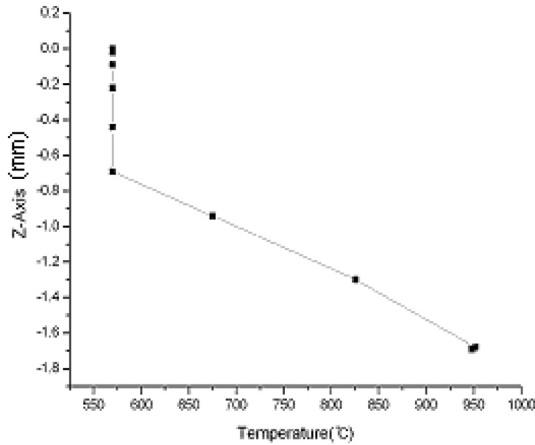


Fig. 6. Expansion-shrinking graph of Ti balls (90 μm) during sintering to 950°C.

때, Fig. 7에서 보는 것과 같이 설정온도를 950°C, 1100°C와 1150°C로 하여 전류를 인가함에 따라 온도가 상승하다가 목적 온도에 도달하면 온도는 일정하게 유지되는 것을 알 수 있었으며, 소결온도가 높을수록 전류의 변동폭은 커지지만 소결온도에 관계없이 소결온도가 일정하게 유지될 수 있는 최소의 시간은 2분 정도인 것으로 나타났다.

4.1.3 기공도의 변화

Fig. 8은 입자 크기가 90 μm이며, 950°C에서 2분 동안의 소결 조건에서 제조된 Ti ball 임플란트 샘플의 표면 사진으로 점점축으로 연결된 다공성 표면을 갖는 형상을 보여주고 있다.

Fig. 9는 입자 크기가 125급 μm이며, 1150°C에서 2분 동안의 소결 조건에서 제조된 Ti ball로 코팅되어 있는 core 소결체의 표면 사진으로 ball과 ball사이,

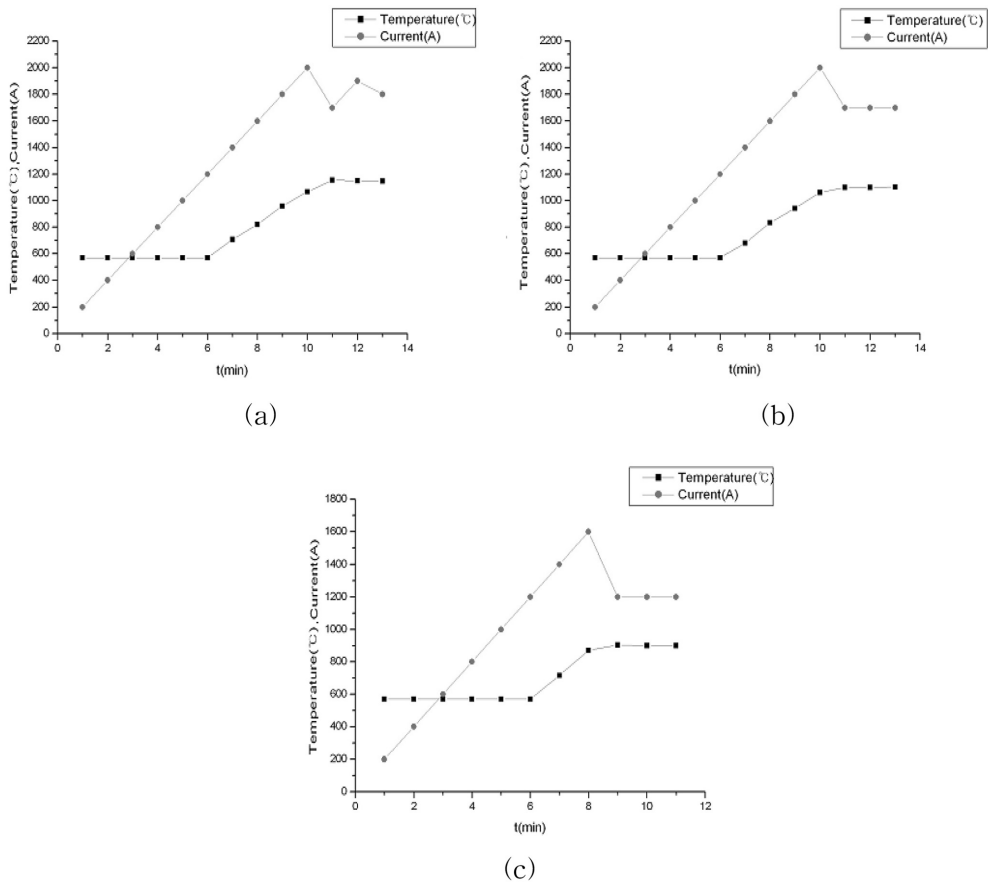


Fig. 7. Change of current during sintering: a) 1150°C, b) 1100°C and c) 950°C.

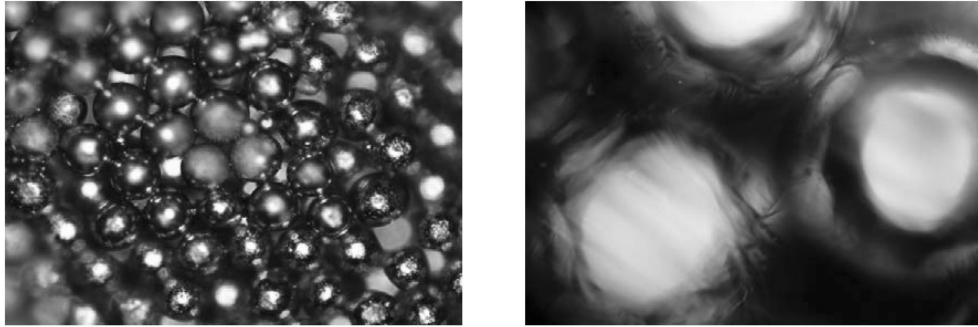


Fig. 8. Appearance of Ti ball(90 μm) sintered by spark plasma sintering.

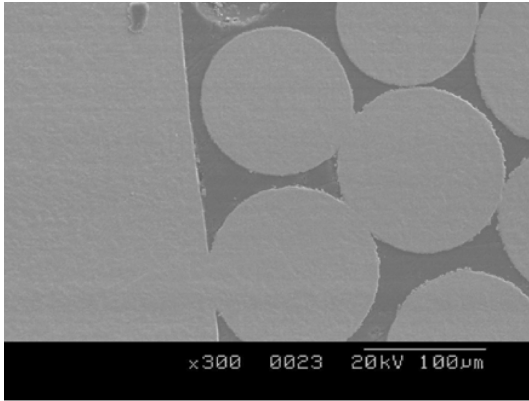


Fig. 9. SEM image of core and Ti balls (125 μm) sintered by spark plasma sintering.

ball과 core 사이에 점접촉으로 연결되어 있는 형상을 보여 주는 주사전자현미경사진을 보여주고 있다.

Table 1은 온도에 증가에 따른 Ti ball 소결체의 기공도를 나타낸 것으로, 동일 크기의 볼에 대한 소결온도가 상대적으로 높을수록 기공도 또한 증가하는 것으로 나타났으며, 이는 수축이 일어나기 전까지 입자와 입자 사이가 팽창되는데, 동일 크기의 티타늄 ball을 소결할 경우 SPS에 설정된 소결온도가 높아질 경우 Fig. 7에서 보는 바와 같이 최고 전류가 증가하고 이후에 빠른 팽창에서 수축으로 변화가 급격히 일어날 수 있고 설정온도가 되면 2분간만 소결하기 때문에, 점성유동에 의한 점접촉부분의 수축이 더 적게 일어난 상태에서 소결이 완료되기 때문에 더 큰 기공도를 갖는 것으로 예상되며, 이로 인하여 점접촉 및 큰 기공도를 갖는 다공성의 임플란트를 제조할 수 있었다고 생각된다.

Table 1. Change of porosity of sintered balls with temperature

Temperature (°C)	Porosity(%)-90 μm ball	Porosity(%)-125 μm ball
900	17.8	-
950	25.5	-
1100	-	16
1150	-	21

4. 결 론

1. 티타늄 ball의 소결온도 및 유지시간은 Z 축의 팽창비율이 급격히 변하는 지점으로 선택하였으며, 각 샘플의 소결시 설정온도에서 2분정도가 지나면 목적하는 온도가 일정하게 유지되었다.

2. 작은 볼을 사용하는 경우 성형밀도가 높아지게 되므로, 입자간의 접촉점이 많아져 소결이 촉진되기 때문에 이상적인 점접촉을 기대하기 어렵다는 것을 알 수 있었다.

3. 점접촉을 이루기 위해서는 유지시간을 짧게 설정하는 것이 중요하며, 최대한 짧은 시간을 갖기 위해서 더 높은 인가전류의 부하와 최적의 소결온도를 설정하는 것이 중요한 것을 알 수 있었다.

4. 소결체의 형상을 관찰한 결과 이상적인 점접촉을 형성하는 다공성 ball의 소결체를 얻을 수 있었다. 이로 인하여 우수한 점접촉 및 기공도를 갖는 다공성의 임플란트를 제조할 수 있었다.

5. 동일 크기의 Ti ball을 사용하여 소결할 경우 더 높은 온도에서의 소결체의 기공도가 더 높은 것으로 나타났으며, 이는 수축이 일어나기 전까지 입자

와 입자사이가 팽창되는데, 동일 크기의 티타늄 ball 을 소결할 경우 SPS에 설정된 소결온도가 높아지면 인가되는 최고 전류가 증가하고 이후에 빠른 팽창에서 수축으로 변화가 급격히 일어날 수 있으며, 또한 설정온도가 되면 2분간만 소결되기 때문에, ball간의 접촉점의 확장이 적게 일어난 상태로 소결이 완료되기 때문인 것으로 예측된다.

Acknowledgement

이 연구는 금오공과대학교 연구비 지원(2005-104-050)에 의하여 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

참고문헌

1. Branemark, P. I. : Introduction to Osseointegration. In Branemark PI, et al (Eds), Tissue Integrated Prostheses, Chicago, Quintessence Publishing Co. Inc., (1985) 29.
 2. Deligianni, D. D., Katsala, N., Ladas, A. S., Sotiropoulou, D., Amedee, J. and Missirlis, Y. F. : Biomaterials, **22** (2001) 1241.
 3. Schwarz, Z., Kieswetter, K., Dean, K. K. and Boyan, B. D. : J. Periodontal Res., **32** (1997) 166.
 4. D. Deporter, R. Pilliar, R. Todescan, P. Watson and M. Pharoah : Int, J. of Oral & maxillof. implants, **16** (2001) 653.
 5. D. Deporter, P. Watson, M. Pharoah and R. Todescan : Clinical Oral Implants Res., **10** (1999) 95.
 6. R. Nicula, F. Lüthen, M. Stir, B. Nebe and E. Burkel : Biomolecular Engineering, **24**(5) (2007) 564-567.
 7. D. L. Johnson and I. B. Cutler : J. Am. Ceram. Soc., **46**(11) (1963) 541-550.
1. Branemark, P. I. : Introduction to Osseointegration. In Branemark PI, et al (Eds), Tissue Integrated