

平成 21 年 4 月 3 日現在

研究種目：基盤研究 (C)

研究期間：2007～2008

課題番号：19560737

研究課題名 (和文) スモールスケール接合による NiTi 製高機能医療用デバイスの作製

研究課題名 (英文) Feasibility of fabrication of medical devices made of NiTi alloy by small-scale joining processes

研究代表者：福本 信次

兵庫県立大学・大学院 工学研究科・准教授

研究者番号：60275310

## 研究成果の概要：

低侵襲治療に欠かせないカテーテルガイドワイヤには NiTi 合金とステンレス鋼の接合技術が不可欠である。しかしながら、NiTi/ステンレス鋼の溶融溶接においては接合界面には脆弱な化合物が生成して高強度継手を得ることができない。本研究では接合プロセスとして摩擦圧接およびロウ付けを選択した。種々のインサート材およびロウ材を適用することで接合界面の最適化を図り、大幅に継手強度を改善することに成功した。また将来の医療用デバイス材料として期待されている金属ガラスについてもその接合性を検討した。

## 交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007 年度	2,200,000	660,000	2,860,000
2008 年度	1,300,000	390,000	1,690,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：材料工学，材料加工・処理

キーワード：スモールスケール接合，組織制御，NiTi 合金，ステンレス鋼，摩擦圧接，ロウ付け

## 1. 研究開始当初の背景

各マスメディアで頻繁に取り上げられる少子高齢化社会問題。総務庁統計局国勢調査によると 21 世紀初頭には我が国における 65 歳以上の高齢者人口は総人口の 25%以上になると予想されている。この高齢化社会の到来にともない、機能低下あるいは喪失した生体組織を人口材料で補完する機会が益々増加すると予測される。また体力の低下した高齢者への大手術は体への負担が大きく、可能

な限り負荷の小さい治療が望まれる。たとえば、患者体外より血管にカテーテルを通し、血管患部を直接治療することにより手術時間・患者への負担が激減される低侵襲治療が急激に普及してきている(図 1)。この治療用カテーテルを患部に到達させるには、あらかじめガイドワイヤと呼ばれる導き線を患部まで同じく体外より血管中を通しておく必要があり、医師にとって操作性の良いガイドワイヤが要求されている。そのためには、従来

のような超弾性 NiTi 合金単体で作製されたワイヤではなく、NiTi/SUS や NiTi/Ti といった異種金属を接合したガイドワイヤが求められている。また網状の NiTi 製のステント作製には熱影響の大きなレーザ加工よりもクロスワイヤ溶接が適していると考えられる。また国際的な競争力をみた場合、数  $\mu\text{m}$  オーダーのワイヤボンディングの領域では北米、日本、韓国などの企業、大学で激しい競争が繰り広げられているが、本研究のターゲットである 0.1-3mm クラス（スモールスケール領域）の報告例は極めて少ないのが現状である。我が国はこの電子・医療・接合のオーバーラップ領域でイニシアティブを取る必要がある。



図1 低侵襲治療のイメージ

## 2. 研究の目的

低侵襲治療に欠かせない医療器具カテーテルやステント、さらには縫合、胆石除去といった高機能外科用デバイスなどの作製を前提とし、NiTi 系形状記憶合金および超弾性合金の同種接合およびステンレス鋼との異種金属接合技術を確立することである。また将来医療用デバイス材料として期待されている金属ガラスのマイクロ溶接技術についても検討する。

## 3. 研究の方法

供試材料には TiNi 合金 ( $\phi 0.2$  および  $\phi 2.5\text{mm}$ )、オーステナイト系ステンレス鋼 SUS304 ( $\phi 2.5$  および  $\phi 3\text{mm}$ )、フェライト系ステンレス鋼 SUS430 ( $\phi 3\text{mm}$ )、 $\text{Zr}_{50}\text{Cu}_{40}\text{Al}_{10}\text{Ni}_{10}$  金属ガラス(厚さ 0.26mm)を用いた。接合プロセスは摩擦圧接、抵抗溶接、ろう付けの3種類を検討した。

それぞれの試料は同種接合を基本とし、それに加えて TiNi 合金/SUS304 の摩擦圧接、ろう付けを行った。ろう材は Ag 基ろう、Au 基ろうおよび Ni 基ろうを使用した。接合界面を光学顕微鏡、走査型電子顕微鏡 (EDX および EBSD 付属)、透過型電子顕微鏡を用いて観察した。また継手強度は引張試験および曲げ試験、せん断試験によって評価した。

## 4. 研究成果

### (1) NiTi 同士およびステンレス鋼同士の接合

#### ① マイクロ抵抗溶接

超弾性 NiTi 極細線のクロスワイヤ溶接を行った。まず通電初期にワイヤ表面が抵抗発熱によって一部熔融する。その後、お互いのワイヤが変形しながら食い込みあうことで初期融液が外部に排出される。その際、その融液がワイヤ表面の酸化皮膜を取り除く役割を果たすため、健全な継手が得られることが明らかになった。

この接合方法を利用し、4点同時接合を行った結果を図2に示す。この接合方法によって NiTi 製のネットの作製が可能であることが示唆された。

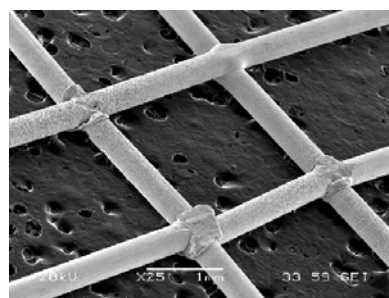


図2 マイクロクロスワイヤ溶接による NiTi 製ネットの作製

#### ② 摩擦圧接

摩擦圧接は回転による摩擦熱を利用する接合プロセスであるために、被接合材の径が小さいものには適用されないことが多い。特に棒径  $\phi 3\text{mm}$  以下の小径摩擦圧接の報告例は皆無で、そのプロセスウィンドウすら明らかになっていない。そこでここでは TiNi 同士およびステンレス鋼同士の小径摩擦圧接を行った。

どちらの場合も、高強度継手を得るためには、回転数を 5000~10000rpm 程度まで大きくする必要があった。界面の組織観察の結果、接合界面は基本的に固相状態であったと推察され、熔融溶接で問題となる TiNi の脆化は避けることが可能であった。

### (2) NiTi とステンレス鋼 SUS304 の接合

#### ① 摩擦圧接

NiTi とステンレス鋼を直接接合した場合、回転数の増加にともない強度はやや向上するものの、最大でも約 200MPa 程度しか得られなかった。接合界面には Fe-Ti 系の脆弱な金属間化合物が不均一に分布しており、低強度の原因となっていた。接合条件を変化させてもこの反応層を低減させるには限界があり、接合界面に Ni 箔を挿入することで接合界面組織の最適化を図った。

Ni をインサート材として用いた場合、Ni/ステンレス鋼界面には金属間化合物や混合層は生成せず、数  $\mu\text{m}$  オーダーの拡散層のみ観察された。一方、NiTi/Ni 界面には複数の中間層が観察された。図3に NiTi/Ni 界面の

組織を示す。回転数が比較的小さい場合、界面には一様に  $\text{Ni}_3\text{Ti}$  が生成した。そして回転数が増加するにつれて  $\text{Ni}_3\text{Ti}$  の化合物層 (図 3a) に加えて、 $(\text{Ni}_3\text{Ti}+\text{NiTi})$  の共晶組織 (図 3b) が接合界面に生成した。またこれらが機械的に混合したような箇所も存在した。

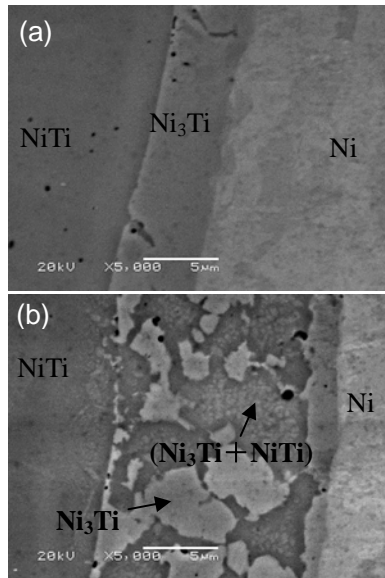


図 3 TiNi/Ni 界面組織: (a)  $\text{Ni}_3\text{Ti}$  単相領域, (b)  $(\text{Ni}_3\text{Ti}+\text{NiTi})$  共晶組織

$\text{NiTi}/\text{Ni}$  界面ではまず  $\text{Ni}_3\text{Ti}$  が生成し、その  $\text{Ni}_3\text{Ti}$  と  $\text{TiNi}$  の共晶反応が生じていることが明らかになった。回転数が増加した場合、界面温度は少なくとも  $\text{Ni}_3\text{Ti}$  と  $\text{TiNi}$  の共晶温度 ( $1118^\circ\text{C}$ ) に達していたと考えられる。図 4 に接合条件と継手強度の関係を示す。

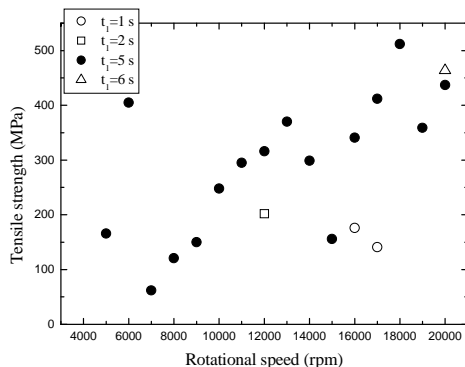


図 4 Ni インサート材を用いた場合の  $\text{NiTi}/\text{SUS304}$  継手強度と摩擦圧接条件の関係

回転数の増加とともに継手強度は増加し、回転数  $18000\text{rpm}$  のとき最大  $500\text{MPa}$  の継手強度を得ることに成功した。この値は  $\text{NiTi}$  と  $\text{SUS304}$  を直接接合した場合の 2 倍以上に相当する。破断はすべて  $\text{NiTi}/\text{Ni}$  界面で生じた。

## ②ろう付け

$\text{NiTi}$  と  $\text{SUS304}$  を Ag ろうおよび Au 基ろうを用いてろう付けしたときのせん断継手強度を図 5 に示す。

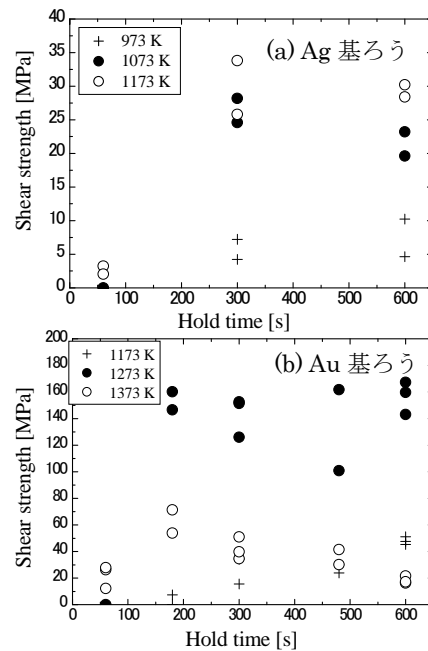


図 5 継手強度とろう付け条件の関係

Ag 基ろうを用いた場合、接合界面に脆弱な  $\text{Fe-Ti}$  系の金属間化合物が生成し、強度は最大でも  $35\text{MPa}$  とかなり低い値となった。Au 基ろうを用いることで接合界面に生成する金属間化合物が  $\text{Ni}_3\text{Ti}$  となり、せん断継手強度は飛躍的に向上した。

以上のように、摩擦圧接およびろう付け、いずれのプロセスにおいても接合界面の組織制御が非常に重要であることが示された。すなわち  $\text{NiTi}$  と  $\text{SUS304}$  の直接接合は現実的ではなく、接合界面に  $\text{Fe-Ti}$  系の金属間化合物を生成させることなく、 $\text{Ni}_3\text{Ti}$  が主となる反応層を形成させることで継手強度を向上できることが明らかになった。

## (3) Zr 基金属ガラスの溶接

Zr 基金属ガラスは熱サイクルを受けることで結晶化あるいは構造緩和を起し、脆化しやすいために溶接が非常に困難な材料である。このような結晶化を避けて溶接するためには非常に大きな冷却速度を有するプロセスを選択する必要がある。また酸素がわずかに混入するだけで脆化してしまうために大気中での溶接は困難とされていた。そこでここでは大気中での金属ガラスの溶接を目指してマイクロ抵抗スポット溶接を適用した。

図6に継手断面を、また図7に各溶接電流に対する接合部中心における微小領域X線回折図形を示す。溶接電流を増加させると接合領域は大きくなった。ここでは一般的な抵抗スポット溶接に見られるような溶接ナゲットが観察されなかった。これは溶接部およびその近傍で顕著な結晶化が生じていないことを示唆している。XRD 図形もすべてブロードな図形であり、結晶化させずに溶接できることが明らかになった。継手強度も母材に匹敵する強度が得られており、図8に示すように破面には十分な延性を示すベインパターンが全面に形成していた。また破面周囲には粘度の高い状態で押し出された金属ガラスが存在していた。このことから考えると、溶融部の周りを過冷却液体が覆うような接合メカニズムであったのではないかと推測される。このメカニズムについては今後さらなる検討が必要である。

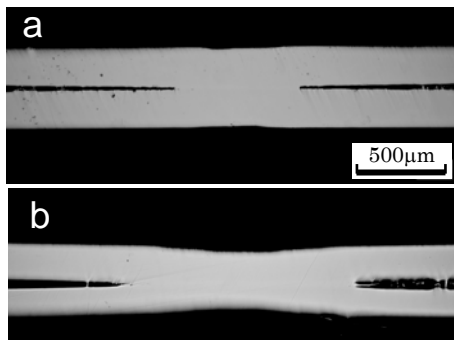


図6 金属ガラスのマイクロ抵抗スポット溶接部断面：(a) 200 A, (b) 600 A.

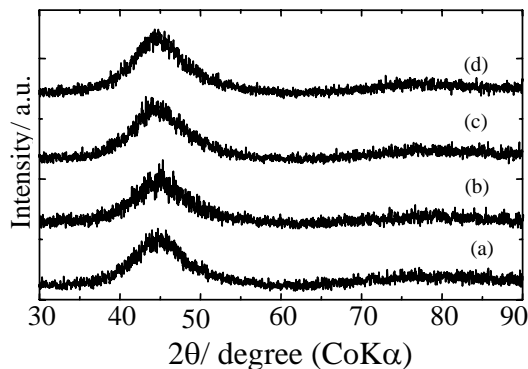


図7 マイクロ抵抗スポット溶接部中央における微小領域 XRD 回折図形：(a) 200 A, (b) 400 A, (c) 700 A, (d) 900 A.

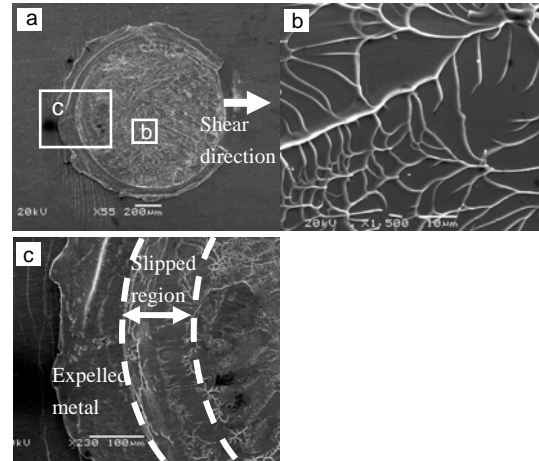


図8 せん断試験後の破面。(a) 全体像, (b) 破面全域に認められるベインパターン, (c) 接合部周りにはみ出した金属ガラスおよびせん断方向に形成されたずり領域。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 5 件)

- (1) S. Fukumoto, K. Katayama, K. Okita, T. Tomita, A. Yamamoto: Small-scale friction welding of similar and dissimilar stainless steels, 溶接学会論文集, (2009) (*in press*). (査読有)
- (2) S. Fukumoto, S. Morikawa and A. Yamamoto: Small-scale resistance welding of crossed TiNi fine wire, Materials Science Forum, Vols.580-582, (2008) 225-228. (査読有)
- (3) K. Fujiwara, S. Fukumoto, Y. Yokoyama, M. Nishijima and A. Yamamoto: Weldability of Zr50Cu30Al10Ni10 bulk glassy alloy by small-scale resistance spot welding, Materials Science and Engineering A, 498, (2008) 302-307. (査読有)
- (4) 福本信次, 水野峻介, 山本厚之, 富田友樹, 沖田耕三: 小径 TiNi 合金への摩擦圧接の適用とそのプロセスウィンドウ, 摩擦接合, 7(1), (2008)13-16. (査読無)
- (5) S. Fukumoto, K. Fujiwara, Y. Yokoyama, Y. Murakami and A. Yamamoto: Small Scale Resistance Spot Welding of Zr Based Glass Alloys, Mater. Sci. Forum, Vols.561-565, (2007)1307-1310. (査読有)

[学会発表] (計 7 件)

- (1) S. Fukumoto, K. Fujiwara, Y. Izumi, Y. Yokoyama, M. Nishijima and A. Yamamoto: Weldability of Zr-based bulk

glassy alloys by small-scale resistance spot welding, IUMRS-ICA 2008, 名古屋国際会議場 (2008.12.12).

- (2) 福本信次, 片山公貴, 沖田耕三, 富田友樹, 山本厚之: 異種ステンレス鋼のスケールスケール摩擦圧接, 溶接学会 H20 年度秋季全国大会, 北九州国際会議場 (2008.9.10).
- (3) 福本信次, 藤原佳奈, 山本厚之, 横山嘉彦, 西嶋雅彦: 金属ガラスのスケールスケール抵抗スポット溶接における温度履歴, 金属学会 (第 142 回), 武蔵工大 (2008.3.28).
- (4) 水野峻介, 福本信次, 山本厚之, 友田友樹, 沖田耕三: 小径 TiNi 合金への摩擦圧接の適用とそのプロセスウィンドウ, 摩擦接合技術協会 H19 年度第 3 回研究会, 大阪府立産業技術総合研究所 (2008.2.15).
- (5) S. Fukumoto, K. Fujiwara, Y. Yokoyama, Y. Murakami and A. Yamamoto: Small Scale Resistance Spot Welding of Zr Based Glass Alloys, PRICM-6, ICC Jeju, Jeju island, Korea (2007.11.7).
- (6) 森川滋, 福本信次, 山本厚之: マイクロ抵抗溶接した TiNi クロスワイヤ継手の微細組織と接合機構, 溶接学会 H19 年度秋季全国大会, 信州大学 (2007.9.20).
- (7) S. Fukumoto, S. Morikawa, A. Yamamoto: Small-scale resistance welding of crossed TiNi fine wire, IWJC-Korea 2007, Seoul, Korea (2007.5.11)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

福本 信次

兵庫県立大学・大学院 工学研究科・准教授

研究者番号: 60275310

### (2) 研究分担者

山本 厚之

兵庫県立大学・大学院 工学研究科・教授

研究者番号: 70220449

### (3) 連携研究者

なし