

平成 27 年 6 月 24 日現在

機関番号：22604

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2012～2014

課題番号：24360310

研究課題名(和文)超塑性ダイレス加工における結晶組織制御を利用した医療用高品位微細管の創製法開発

研究課題名(英文) Fabrication of high grade medical microtubes with microstructure control in superplastic dieless drawing process

研究代表者

真鍋 健一 (MANABE, Ken-ichi)

首都大学東京・理工学研究科・教授

研究者番号：10145667

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,700,000円

研究成果の概要(和文)：医療用高品位マイクロチューブを創製するため、回転とねじり付与機構をもち安定した局所的加熱ができるレーザー加熱型ダイレス引抜き加工装置を開発した。速度急変法で m =約0.3をもつ超塑性チタンと m =0.06のステンレスSUS304では外径変動をエメリー紙で取り除く処理を併用することで、チタン合金では目標外径よりさらに細い180 μ mまで、またSUS304では190 μ mまでの高品位な表面をもつマイクロチューブの創製に成功した。また、適切なねじり量の付与によって引張強さと破断伸びを同時に向上させる引抜き条件を見い出し、加工熱処理としてマイクロチューブのレーザーねじりダイレス引抜きの有効性を示した。

研究成果の概要(英文)：A vertical-type dieless drawing machine with laser-heating for micro-scale tubes was developed to fabricate a high-grade medical microtubes. The machine is capable of a stable local micro-scale heating with rotational function and torsional distortion. For superplastic titanium alloy with m -value of about 0.3 and stainless steel SUS304 with m -value of 0.06 evaluated by strain-rate-jump test, respectively, microtubes of outer diameter of 180 μ m for titanium alloy, and 190 μ m for SUS304 were successfully fabricated with a high-surface quality. In addition, it is found that an appropriate twisting condition can improve the tensile strength and elongation at breakage for microtube at the same time, and it concludes that the effectiveness of the laser torsional dieless drawing for microtubes as thermomechanical treatment.

研究分野：塑性工学

キーワード：ダイレス引抜き 熱援用加工 マイクロチューブ 引抜き限界 マルチパス 表面あれ 外径精度 加工条件

1. 研究開始当初の背景

Ti合金、マグネシウム(Mg)合金、ステンレス鋼の非常に細い金属マイクロチューブは、注射針やステントなどの医療用部材として注目されている。マイクロチューブの製造法として、金型を用いる引抜き加工が挙げられるが、金型寸法も微小化することから、金型自体の製作・ハンドリングが困難になる。また電鍍法によるマイクロチューブの製造方法は、対象材料に限られること、強度、機能特性および二次加工性の面で劣る、といった欠点が挙げられる。そこで、研究代表者らはこれまでに図1に示すような超塑性特性を有するチューブを局所加熱し、引張変形を加えることで金型を一切用いることなくチューブを加工するダイレス引抜き法に着目し、SPZ超塑性材料を用いて4パスで直径200 μm のマイクロチューブの開発に開発してきた。

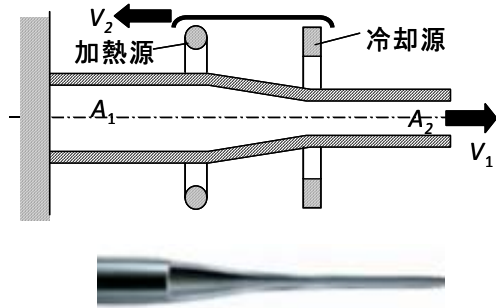


図1 ダイレス引抜き法の概略図(上)とインスリン用無痛注射針(下:テルモ製:先端外径200 μm ,内径50 μm (SUS材))

しかしながら、ダイレス引抜き法を医療分野に適用していくためには、医療用材料でのマイクロチューブ創製の可能性検証と実用面からの高品位化(薬液注入抵抗減、高表面性状・平滑化)と高強度・材質改善(耐折損性)を実現することが必要であり、次の課題解決が必須であった。

- ① SPZより生体適合性に優れ、かつ超塑性特性を有する医療用材料への適用検証
- ② 結晶組織制御による結晶粒微細化と高強度化を図る新しいダイレス加工熱処理プロセスの開発
- ③ マルチパスダイレス加工における自由表面あれ挙動と加工熱処理中のその進展メカニズムの解明

2. 研究の目的

本研究では、研究代表者らの開発実績のある金型工具を使わない超塑性ダイレス引抜き法を、注射針やステントなどに用いられるチタン(Ti)合金等の医療用金属マイクロチューブ創製に展開し、そのプロセス中に結晶組織制御による相変態と結晶微細化を行い、これまで課題であった自由表面あれを抑え表面性状の向上および高強度化と材質改善の相乗効果による高品位なマイクロチュー

ブを創製実現するプロセス開発を行うものである。この目的を達成するため、主に以下の3つの項目について検討した。

- ① 生体適合性に優れ超塑性特性を示す医療用材料(Ti合金、ステンレス鋼SUS304)のマイクロチューブ創製検証
- ② ダイレス加工熱処理プロセスにおける結晶組織制御による結晶粒微細化
- ③ マルチパスダイレス加工における自由表面あれ挙動と加工熱処理中のその進展メカニズムの解明

3. 研究の方法

(1) レーザー加熱縦型ダイレス引抜き加工装置の開発

これまで、一般的にダイレス引抜きにおいては高周波誘導加熱装置を用いた加熱方式が採用されていた。しかしながら、寸法の微細化に伴い加熱状態を相似的に小さくした場合、加熱される表面積が2乗に比例して小さくなるのに対して、材料の物性値である熱伝導率は変化しないため、マクロスケールと同様の加熱状態をマイクロスケールで再現するためには、これまでよりもさらにエネルギー密度の高い加熱方法が必要であった。またこれまでの横型ダイレス引抜き方式では被加工材が加熱され自重でたわむ現象が現れ一様な加熱を阻害する悪影響が表れていた。そこで、本研究では上記の課題を解決するためにレーザー加熱を用いた縦型ダイレス引抜き装置の開発を行った。

開発した縦型ダイレス引抜き装置の外観を図2に示す。本装置では、レーザー加熱装置により供試管に対して局所的に加熱を行い、固定された供試管の両端を2つのサーボモータによって引抜き速度 V_1 、供給速度 V_2 で一方方向に移動させることで速度差を与えることにより引張力を生じさせた。レーザー加熱源には株式会社アポロ精工製の120W高出力半導体レーザー加熱装置を用いた。

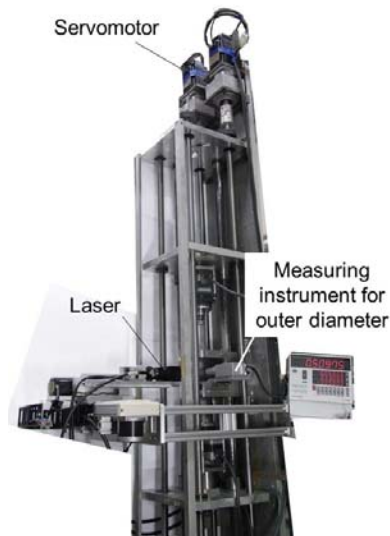


図2 開発したレーザー加熱縦型ダイレス引抜き装置の外観

レーザーダイレス引抜きの詳細な加工原理を図3に示す。円周方向の加熱温度を均一にするために、上下2つの回転用モータは、それぞれ別の2つのモータによって移動するテーブルに固定されている。供試管は回転機構を用いて回転させている。また、回転による振動を防止するためにガイドを作製した。

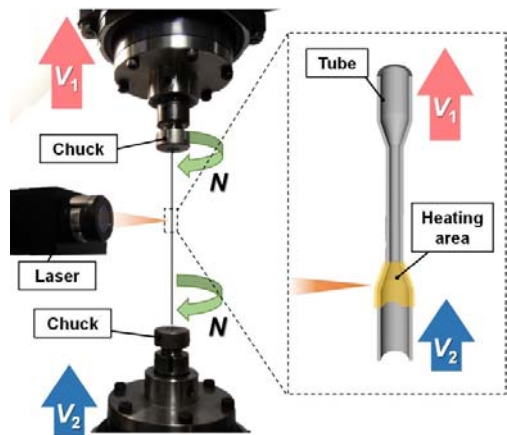


図3 レーザー加熱型ダイレス引抜きの加工原理

(2) 供試材

本研究では医療分野において非常に広く利用されているステンレス鋼 SUS304 と、生体適合性に優れたチタン合金として、高強度かつ比較的加工性に優れた β チタン合金を用いた。一部マグネシウム合金 AZ31 も用いた。SUS304 管は(株)日本特殊管製で、 β チタン合金は(株)チタンクリエーター福井製のものを用いた。供試管の寸法は SUS304 と β チタン合金ともに公称外径 500 μm 、公称内径 240 μm 、公称肉厚 130 μm で統一した。

(3) マルチパスダイレス引抜きにおける総断面減少率の定義

引抜き速度 V_1 、供給速度 V_2 で一方向に移動させることで速度差を与え、引張力を負荷した。断面減少率 r は引抜き速度 V_1 、供給速度 V_2 の比によって決定され以下の式(1)で表される。

$$r = 1 - (v_2/v_1) \quad (v_1 > v_2) \quad (1)$$

また、マルチパスダイレス引抜き法では、一度引抜いた供試管を繰り返し引抜く手法である。体積一定則から求めた理論的な断面減少率を総断面減少率 r_{total} と定義し、引抜き限界の評価に用いた。1 パス目に断面減少率 Δr_1 で、2 パス目に断面減少率 Δr_2 で、 i パス目に断面減少率 Δr_i で引抜いていき、最終的に $n+1$ パス目で破断した場合、 n 回引抜き終わった時点でのこの条件における引抜き限界とした。その時の総断面減少率 r_{total} は以下の式(2)で表され、算出には設定した引抜き速度 V_1 、供給速度 V_2 を用いた。

$$r_{total} = 1 - \prod_{i=1}^n (1 - \Delta r_i) \quad (2)$$

(4) 表面平滑化の方法

引抜き限界向上の効果が期待できる表面平滑化を各パス後に行った。表面平滑化はエメリー紙 (#400→#1200) を用いた表面研磨によって行い、円周方向に管材を回転させながら研磨することで肉厚のばらつきを減少させた。さらに、比較対象として表面平滑化を行わない条件においても実験を行った。供試管の評価のために、株式会社キーエンス製のレーザ外径測定器 (LS-7010) を用いて、長手方向の外径分布を各パスおよび表面平滑化後に測定した。

4. 研究成果

(1) マルチパスダイレス加工による高品位な医療用マイクロチューブの創製プロセスの開発

高品位な表面状態を有し高強度なチタン合金等の医療用マイクロチューブを創製するマルチパスダイレス加工プロセス条件を実験的に検討した。

① β チタン合金

表面平滑化をしなかった場合とした場合における各パス後の外径分布を図4および図5に示す。表面平滑化を行わなかった場合は図4のようにパスを重ねるごとに外径変動が蓄積されて大きくなり3パス目で破断している。一方で、表面平滑化をした場合図5に示すように、外径変動の蓄積が抑制され、設定した4パスすべてを破断せずに引抜けていることがわかる。

図6に示すように、得られた総断面減少率に着目すると、表面平滑化をした場合は総断面減少率 $r_{total} = 84.3\%$ に達し、平滑化をしなかった場合には $r_{total} = 64\%$ に留まった。つまり、表面平滑化により総断面減少率が 20.3% も向上したことになる。

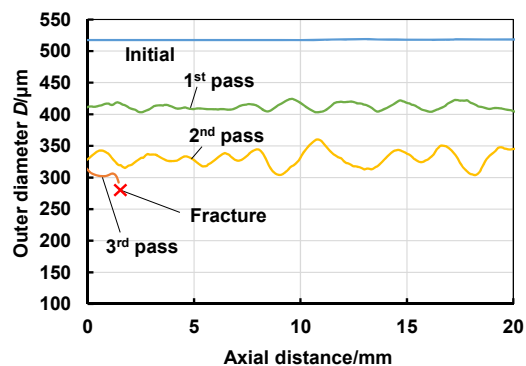


図4 表面平滑化をしない場合のマルチパスダイレス引抜きにおける外径分布 (β チタン合金, $V_2=0.1$ mm/s, $T=800^\circ\text{C}$, $\Delta r_1=\Delta r_2=40\%$, $\Delta r_3=37.5\%$)

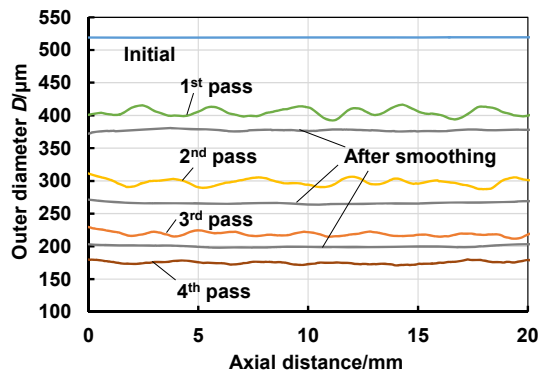


図5 表面平滑化をした場合のマルチパスダイレス引抜きにおける外径分布 (β チタン合金, $V_2=0.1\text{mm/s}$, $T=800^\circ\text{C}$, $\Delta r_1=\Delta r_2=40\%$, $\Delta r_3=37.5\%$, $\Delta r_4=30\%$)

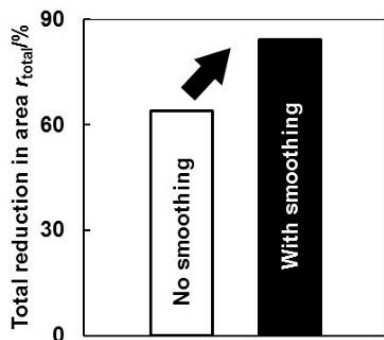


図6 マルチパスダイレス引抜きにおける総断面減少率に及ぼす表面平滑化の効果 (β チタン合金管, $V_2=0.1\text{mm/s}$, $T=800^\circ\text{C}$, $\Delta r_1=\Delta r_2=40\%$, $\Delta r_3=37.5\%$, $\Delta r_4=30\%$)

ダイレス引抜きの特徴であるが、引抜き前と引抜き後の供試管の断面写真から、マルチパスダイレス引抜きによって穴がつぶれることなく縮管されていることは確認した。使用した供試管内面の公称算術平均粗さは $Ra=20\mu\text{m}$ であり、内径の円形状がいびつなのはそのためだと考えられる。また、通常のダイレス引抜きでは、断面形状が相似的に小さくなるのに対して、本手法では表面平滑化により肉厚が減少しているため、相似的に小さくなっていないことがわかる。

以上の結果より、レーザーマルチパスダイレス引抜きおよび各パス後の表面平滑化に

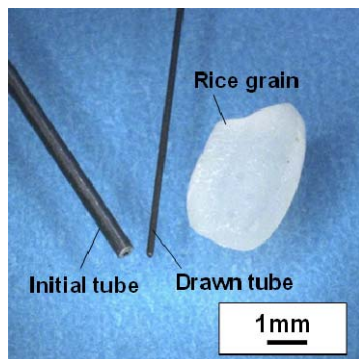


図7 レーザーダイレス引抜きで創製された外径 $180\mu\text{m}$ の β チタン製マイクロチューブの外観

より、図7に示すような外径 $180\mu\text{m}$ の β チタン合金微細管を創製することができた。これは β チタン合金のひずみ速度感受性指数 m 値が大きく超塑性をほぼ有してダイレス引抜きに適しているためであり、それにより従来の $1/2$ のパス数で最小外径 $180\mu\text{m}$ を達成することに成功している。

② SUS304

上記の β チタンと同様に、ステンレス鋼 SUS304 でもマルチパスダイレス引抜きにおいても検討し、表面平滑化によって破断因子である外径変動が取り除かれることで、引抜き限界が向上することを実験的に確認した。また、本手法を用いることで、レーザーマルチパスダイレス引抜きにより総断面減少率 $r=83.2\%$ 、最小外径 $190\mu\text{m}$ の SUS304 微細管を創製することに成功した (図8)。

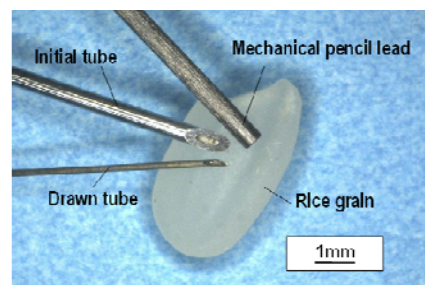


図8 レーザーダイレス引抜きで創製された外径 $190\mu\text{m}$ の SUS304 製マイクロチューブの外観

③ AZ31 マグネシウム合金

初期外径 5mm の AZ31 マグネシウム合金を用いてマルチパスダイレス引抜きにより結晶粒微細化の可能性について検討した。 470°C でのダイレス引抜きの限界断面減少率は 60% が得られた。従来の研究成果から 470°C は超塑性が発現しているものと思われ、そのため上記のような大きな限界断面減少率が得られたものと推察される。2パスのダイレス引抜きでは 70% の総断面減少率が得られた。図9に、AZ31 のダイレス引抜きにおける断面減少率による結晶組織の変化 (370°C) を示す。初期に $16.5\mu\text{m}$ から断面減少率を増加させるにしたがい微細化して、 $5.1\mu\text{m}$ まで微細化を達成した。このように、ダイレス引抜きは結晶粒微細化の効果が期待できるプロセスであることが明らかになった。

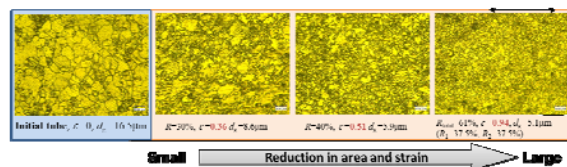


図9 AZ31 マグネシウム合金のダイレス引抜きによる結晶粒微細化の効果

(2) レーザーダイレス引抜きにおけるねじり付与効果

① レーザーダイレス引抜き後の機械的特性に及ぼすねじり量の影響

図 1 1 に機械的特性として引張強さと破断伸びに及ぼすねじり量の影響を示す。回転速度差 N の増加、すなわちねじり量の増加に伴い、引張強さが向上する。一方、破断伸びは、ねじり量の増加に伴い、一度増加するものの、 $N=0.56\text{rps}$ で極大値を取り、その後、ねじり量の増加に伴い減少する。つまり、適切なねじり量を被加工材に付与することにより、強度と延性の両方を向上させることが可能な引抜き条件があることがわかった、またねじり量の制御によって引抜き後の機械的特性を制御できる可能性を示した。

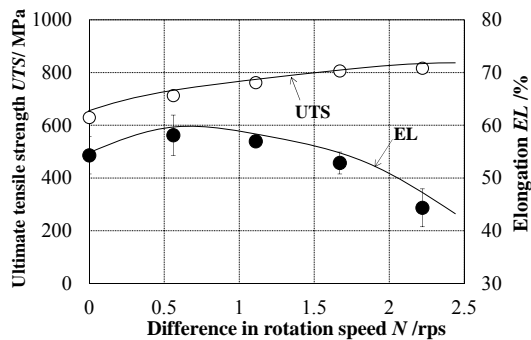


図 1 1 レーザーダイレス引抜き後のマイクロチューブの引張強さと伸びに及ぼすねじりの効果

② 表面性状に及ぼすねじり量の影響

図 1 2 は表面性状および算術平均粗さ Ra に及ぼすねじり量の影響を示す。ねじり量の増加に伴い、ゆるやかに算術平均粗さ Ra は増加しており、回転速度差 N が 2.22rps を超えると急激に増加しているのがわかる。ねじり量が増加すると、引抜き材表面に、ねじれによる筋模様が発生しており、ねじり量の増加に伴い、ねじれによる筋模様の軸方向からの角度が大きくなり、最終的に引抜き方向と垂直方向に平行に近い、筋模様が引抜き材表面に生じているのがわかる。また前節の引張試験における、ねじり量の増加に伴い破断伸びが低下した要因として、引張方向に対し垂直に近い角度で生じたねじれによる筋模様が、くびれの起点となって破断したと考えられる。

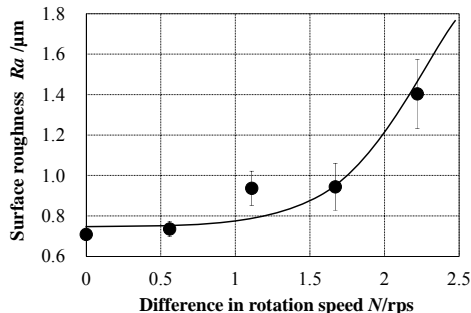


図 1 2 レーザーねじりダイレス引抜きにより創製されたマイクロチューブの表面粗さに及ぼすねじりの効果

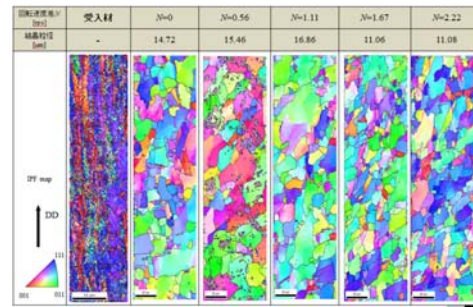


図 1 3 結晶組織および結晶粒径に及ぼすねじりの効果

図 1 3 に結晶組織および結晶粒径に及ぼすねじり量の影響を示す。ねじり量の増加に伴い、結晶粒径も初期の $14.7\mu\text{m}$ から $11\mu\text{m}$ ぐらいまで微細化がされているが、むしろ結晶方位が回転しているとみるべきである。

以上より、ねじりを付与しても加工限界が低下することなく、ねじりなしの場合と同程度の値が得られることを示した。また、適切なねじり量の付与によって引張強さと破断伸びを同時に向上させる引抜き条件を見出した。以上から、加工熱処理としての金属マイクロチューブのレーザーねじりダイレス引抜きの有効性を実証した。課題として、ねじり付与した場合の表面あればねじり量の増加に伴い急激に増加するため、その抑止するねじり量の解明が挙げられる。

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 7 件)

1) Tsuyoshi Furushima, Yusuke Imagawa, Ken-ichi Manabe, Takashi Sakai, Effects of Oxidation and Surface Roughening on Drawing Limit in Dieless Drawing Process of SUS304 Stainless Steel Microtubes, Journal of Materials Processing Technology, 223 (2015) 186–192 (査読有).

<http://dx.doi.org/10.1016/j.matprotec.2015.03.03>

3

2) Tsuyoshi Furushima, Yusuke Imagawa, Shusaku Furusawa and Ken-ichi Manabe, Development of Rotary Laser Dieless Drawing Apparatus for Metal Microtubes, Key Engineering Materials, Vol. 626 (2015) 372–376 (査読有). doi:10.4028/www.scientific.net/KEM.626.372

3) Tsuyoshi Furushima, Yusuke Imagawa, Shusaku Furusawa, Ken-ichi Manabe, Deformation Profile in Rotary Laser Dieless Drawing Process for Metal Microtubes, Procedia Engineering 81 (2014) 700 – 705 (査読有). doi: 10.1016/j.proeng.2014.10.063

4) Tsuyoshi Furushima, Atsushi Shirasaki, Ken-ichi Manabe, Fabrication of noncircular multicore microtubes by superplastic dieless drawing process, Journal of Materials Processing Technology 214, Issue 1 (2014) 29–35 (査読有)

<http://dx.doi.org/10.1016/j.jmatprotec.2013.07.005>

5) S. Supriadi and K. Manabe, Enhancement of Dimensional Accuracy of Dieless Tube-drawing using Vision-based Fuzzy Control, Journal of Materials Processing Technology, 213(2013), 905-912 (査読有).

[doi.org/10.1016/j.jmatprotec.2012.12.011](http://dx.doi.org/10.1016/j.jmatprotec.2012.12.011)

6) S. Supriadi, T. Furushima, K. Manabe, Real-Time Process Control System of Dieless Tube Drawing with an Image Processing Approach, Materials Transactions, 53(2012), 862-869 (査読有).

<http://dx.doi.org/10.2320/matertrans.MF201118>

7) T. Furushima, K. Manabe, Workability of AZ31 Magnesium Alloy Tubes in Dieless Drawing Process, Steel Research International, (2012) 851-854 (査読有).

〔学会発表〕(計 12 件)

1)古澤 周作、レーザーマルチパスダイレス引抜きによる β チタン合金微細管の創製、平成 27 年度塑性加工春季講演会、(2015 年 5 月 30 日) 慶應義塾大学(神奈川・横浜市)

2)古澤 周作、レーザーマルチパスダイレス引抜きにおけるステンレス微細管の表面平滑化の効果、日本機械学会関東支部第 21 期総会講演会、(2015 年 3 月 20 日)、横浜国立大学(神奈川・横浜市)

3) Tsuyoshi Furushima, A novel processing for metal microtubes -rotary laser dieless drawing process-, Proc.11th International Conference on Technology of Plasticity, ICTP 2014, 21 October 2014, Nagoya Congress Center, Nagoya, Japan

4) Tsuyoshi Furushima, Development of Rotary Laser Dieless Drawing Apparatus for Metal Microtubes, The 12th Asia-Pacific Conference on Engineering Plasticity and Its Applications(AEPA2014), 4 September 2014, Kaohsiung, Taiwan.

5) 古島 剛、レーザねじりダイレス引抜きによって創製した金属マイクロチューブの機械的特性評価、平成 26 年度塑性加工春季講演会、(2014 年 6 月 8 日)、つくば国際会議場(茨城・つくば市)

6) 今川 裕介、金属マイクロチューブのダイレスねじり引抜き法の開発、日本機械学会第 21 回機械材料・材料加工技術講演会(M&P2012)、2013 年 11 月 10 日、首都大(東京・八王子市)

7) 組沢 至、ダイレス引抜きにより創製したマイクロチューブの SEM-EBSD 観察、第 64 回塑性加工連合講演会、2013 年 11 月 3 日、大阪大(大阪・吹田市)

8) 古澤 周作、マルチパスダイレス引抜き法による金属マイクロチューブの創製、日本機械学会関東支部第 19 期総会講演会、2013 年 3 月 16 日、首都大学東京(東京・八王子市)

9) 今川 裕介、金属マイクロチューブのダイ

レス引抜き過程における変形挙動に及ぼす表面性状の影響、日本機械学会第 20 回機械材料・材料加工技術講演会、2012 年 12 月 1 日、大阪工業大学(大阪・大阪市)

10) T. Furushima, Workability of AZ31 Magnesium Alloy Tubes in Dieless Drawing Process, 14th International Conference on Metal Forming (Metal Forming2012), 2012 年 9 月 19 日, Krakow, Poland.

11) 恒崎 仁美、金属箔材の表面あれ進展挙動と延性破壊、平成 24 年度塑性加工春季講演会、2012 年 6 月 8 日、コマツウエイ総合研修センタ(石川・小松市)

12) 古澤 周作、ダイレス引抜きによるテーパ管の創製、平成 24 年度塑性加工春季講演会、2012 年 6 月 8 日、コマツウエイ総合研修センタ(石川・小松市)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況(計 0 件)

○取得状況(計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1)研究代表者

真鍋 健一(MANABE Ken-ichi)

首都大学東京・理工学研究科・教授

研究者番号：10145667

(2)研究分担者

楊 明(YANG Ming)

首都大学東京・システムデザイン研究科・教授

研究者番号：90240142

(3)研究分担者

古島 剛(FURUSHIMA Tsuyoshi)

首都大学東京・理工学研究科・助教

研究者番号：30444938

(4)研究分担者

高橋 智(TAKAHASHI Satoshi)

首都大学東京・理工学研究科・准教授

研究者番号：80260785

(5)研究分担者

清水 徹英(SHIMIZU Tetsuhide)

首都大学東京・システムデザイン研究科・助教

研究者番号：70614543