

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 17 日現在

機関番号：35409

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2013

課題番号：24792163

研究課題名(和文)水素処理による微細粒チタン合金の超塑性加工法による歯科補綴物の試作と評価

研究課題名(英文) Experimental manufacture and Evaluation of Dental Prostheses by superplastic forming using fine-grained Titanium alloy obtained through hydrogen treatment.

研究代表者

中東 潤 (NAKAHIGASHI, Jun)

福山大学・工学部・准教授

研究者番号：40341200

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 1,100,000円、(間接経費) 330,000円

研究成果の概要(和文)：歯科補綴物の一つであるメタルフレームの作製方法には様々な問題が存在する。例えば、鋳造法であれば表面酸化や内部欠陥の問題が挙げられる。そこで本研究では、それらの諸問題を解決するために水素処理(水素吸蔵-溶体化・マルテンサイト化-熱間圧延-脱水素)によって結晶粒を微細組織化した微細粒Ti-6Al-4V合金を用いた超塑性加工法を提案し、メタルフレームの試作を行った。その結果、適切な温度及び加工圧力、保持時間を与えることで、メタルフレームの輪郭を形成させることができ、超塑性加工法によるメタルフレームの作製が可能であることを示すことができた。

研究成果の概要(英文)：The manufacturing of metal frames for dental prosthesis is associated with various problems. For instance, the casting of metal frames often results in internal defects and surface oxidation. In this study, to circumvent these limitations, we have performed experimental studies on superplastic manufacturing using fine-grained Ti-6Al-4V alloy obtained through hydrogen treatment (hydrogen absorption - quenching - hot rolling - hydrogen desorption).

The outline of the metal frame was thus successfully manufactured by adopting suitable forming temperature, pressure, and holding time. The results obtained in this study substantiate the possibility of manufacturing metal frames for dental prosthesis by superplastic forming using fine-grained titanium alloy.

研究分野：医歯薬学

科研費の分科・細目：歯学、歯科医用工学・再生歯学

キーワード：チタン合金 水素 超塑性 歯科補綴物

1. 研究開始当初の背景

金属多結晶材料の高性能化、あるいは新機能創出の手段として結晶粒微細化がある。これらの方法としては特殊な加工熱処理、近年では強ひずみ加工法等が提案されているが、チタン合金については、この結晶粒微細化の手法が鉄系及びアルミニウム系合金等と比較して極めて少ないのが現状である。強ひずみ加工法をチタン合金に適用して結晶粒を微細化した例が各種報告されているが、この手法では短小なもの(数 cm 程度)しか作製できず、応用については限度があるものと思われる。このような状況の中、チタン合金の結晶粒微細化法として、水素処理法がある。この工程は水素吸蔵 - 溶体化・マルテンサイト化(焼入れ) - 熱間圧延 - 脱水素処理で構成されており、実際、この処理により (hcp)+(bcc)型 Ti-6Al-4V 合金の結晶粒(粒)は 0.5 μm もしくはそれ以下となり、優れた常温強度と超塑性特性(図 1 参照)を示すようになることがこれまでの研究でわかっている。

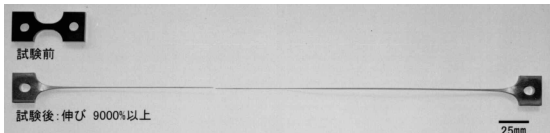


図 1 9000%以上の超塑性伸びを示した微細粒チタン合金(Ti-6Al-4V 合金)

チタン合金は生体親和性に優れていることから、生体用材料としても多く利用されている。しかしながら、チタン合金は難加工材であり、これが用途のさらなる拡大を阻んでいる。歯科医療分野においては、精密加工性が要求されることから、チタン合金の加工性改善は大きな課題である。特に歯科部品の一つであるチタン合金製のクラウンやメタルフレーム(図 2)においては、現在、鋳造法や冷間プレス法、CAD/CAM 法等によって製造



図 2 メタルフレーム外観

されているが、いずれの方法にも精度や機械的性質(強度や伸び)等、それぞれに問題があり、他の製造法の確立が望まれている。現段階では鋳造法が主流であるが、上記の問題の他、鋳造では薄肉の製造が困難という一面もある。

2. 研究の目的

歯科補綴物の一つであるメタルフレームの多くは強度や耐食性、生体親和性に優れたチタン合金製であり、その作製方法として鋳

造法が最も多く用いられている。しかしながら、チタン合金は鋳造という手法からすれば高融点な金属であり、かつ熔融状態での化学反応性が極めて高いこと、鋳造体内部の欠陥の存在、寸法精度の問題、技師の熟練度の必要性など、問題も多いのが実情である。他の製造方法としては、コンピューターを利用して設計や加工を行う方法(CAD/CAM 法)や、冷間プレスによるものがある。しかしこれらの作製方法にも様々な問題がある。そこで本研究では上述の問題を解決するために、水素処理による微細粒 + 2 相型 Ti-6Al-4V 合金を用いた超塑性加工法を提案し、メタルフレームの試作を行うことにした。

水素処理は水素吸蔵 - 溶体化・マルテンサイト化 - 熱間圧延 - 脱水素の 4 工程で成っているが、超塑性加工用薄板を作製するためには、大きな試料を水素処理する必要がある。よってこの試料のための最適水素処理条件を求め、その超塑性を調べることにした。そしてメタルフレーム作製のための最適超塑性加工条件を探索することにした。

3. 研究の方法

(1) 供試素材

供試素材には + 2 相型 Ti-6Al-4V 合金の熱間押出材(結晶粒径は 10 ~ 15 μm)を用いた。

(2) 水素処理

供試素材より、25 mm × 40 mm × 50 mm の試料を切り出し、これに水素処理を行った。水素処理の熱履歴線図を図 3 に示す。

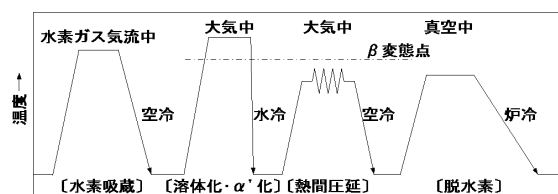


図 3 水素処理の模式的熱履歴線図

Ti-6Al-4V 合金の水素処理における最適水素吸蔵量は 0.5wt.% 程度であるが、上述の通り本研究では大きな試料を用いるため、再度最適水素吸蔵量を求める必要がある。そこで水素吸蔵量の異なる試料を準備し、水素処理を行った。真空熱処理炉の炉内に試料を挿入し、アルゴンガス気流中にて加熱、温度 1073K に達した時点で水素ガス気流(圧力: 0.005MPa)とし、0.9ks 及び 1.68ks 間保持した。その後、再びアルゴンガス気流中にて冷却した。この結果 0.4 及び 0.5 wt.% の水素吸蔵材を得た(以後、0.4%材、0.5%材と記す)。次に、この水素吸蔵材を 変態点より 100K 高い温度である 0.4%材: 1243K、0.5%材: 1223K に加熱、4.2ks 間保持して溶体化させた後、水冷してマルテンサイト(β')組織とした。熱間圧延はリジングの発生を抑制するためにクロス圧延を実施した。その時の温度は 0.4%材: 1043K、0.5%材: 1023K とし、圧下率

は両材とも 80%で行った。最終工程の脱水素処理は、両材とも真空中で温度 873K に加熱、3.6ks 間保持後、炉冷して行った。

(3) 超塑性引張試験

水素処理を施した上記処理材より、平行部：厚さ 2 mm × 幅 5 mm × 長さ 4 mm の板状の引張試験片を切り出し、真空中 (10^{-3} Pa 以下) にて超塑性引張試験を行った。まず、超塑性伸びと変形応力に及ぼす初期ひずみ速度の影響を調べるために、温度を超塑性が発現する 1123K で行い、初期ひずみ速度を粒径 $1\mu\text{m}$ のチタン合金が最も超塑性を示すとされている初期ひずみ速度領域を含んだ範囲である $5 \times 10^{-4} \sim 5 \times 10^{-2} \text{s}^{-1}$ と変化させて試験を行った。

(4) 超塑性加工

今回の実験に使用したメタルフレームの成形型の外観を図 4 に示す。

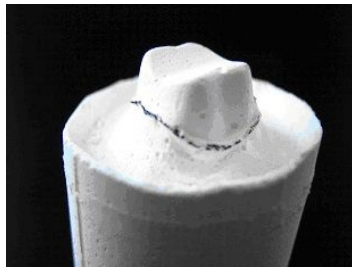


図 4 メタルフレーム成形型の外観

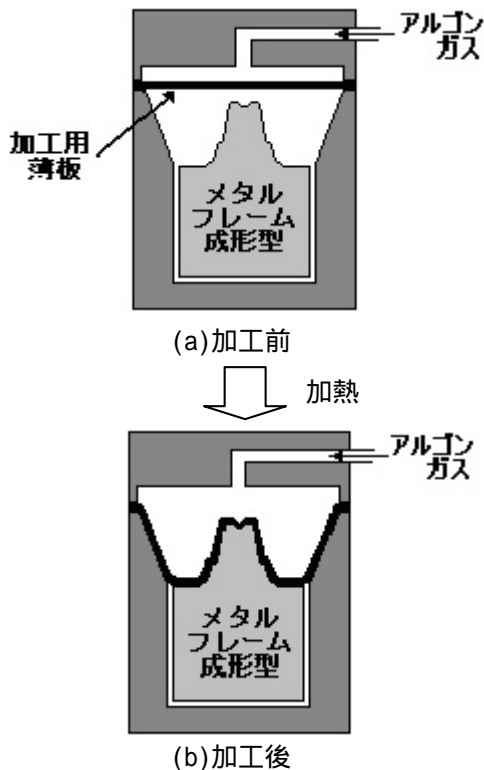


図 5 超塑性加工の概略図

メタルフレーム成形型は、まず人歯から印象採取し、マスターモデルを硬石コウにて作製した。そのマスターモデルからシリコン印象材にて印象採取した後、リン酸マグネシウム系埋没材を硬化したシリコン印象材に流し込み、成形型を作製した。

超塑性加工の概略図を図 5 に示す。水素処理材から切り出した超塑性加工用薄板 (直径 40mm × 厚さ 0.70mm) を加工温度まで加熱した後、薄板上部よりアルゴンガスで加圧して超塑性加工を行った。このときの最適加工条件 (圧力、保持時間) を探索した。なお、加工温度については、これまでの研究で行った超塑性引張試験結果より、水素処理材の超塑性における最適温度である 1123K とした。加工圧力及び保持時間については、加工圧力を 0.5 ~ 1.5MPa、保持時間を 3.6 ~ 18.0ks に変化させて最適条件を探索した。

(5) 試作したメタルフレームの板厚測定

試作したメタルフレームの板厚を測定するために、メタルフレームの中央を切断し、その断面板厚を光学顕微鏡で測定した。測定箇所は図 6 に示す通りで、計 9 箇所を測定した。

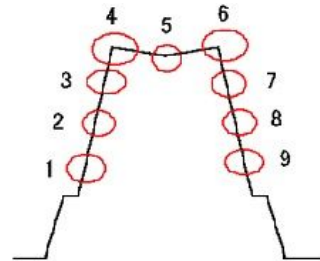


図 6 メタルフレーム断面板厚測定箇所

4. 研究成果

(1) 水素処理による微細粒 Ti-6Al-4V 合金の超塑性

超塑性伸びに及ぼす初期ひずみ速度の影響

0.4%材及び 0.5%材の伸びに及ぼす初期ひずみ速度の影響を図 7 に示す。両材料とも全初期ひずみ速度領域において 1500%以上の大きな伸びを示すことが分かった。しかしながら、0.5%材においては試験後の試験片の一部に不均一変形領域が確認された。このことから、メタルフレーム薄板における最適水素吸蔵量は 0.4%であると判断した。

変形応力に及ぼす初期ひずみ速度の影響

0.4%材及び 0.5%材の変形応力に及ぼす初期ひずみ速度の影響を図 8 に示す。両材料とも変形応力はほぼ等しい。なお、このグラフの傾きで示されるひずみ速度感受性指数 (m 値) は、両材料とも全初期ひずみ速度領域で 0.3 以上であった。このことは両材料が超塑性を示したことを意味する結果である。

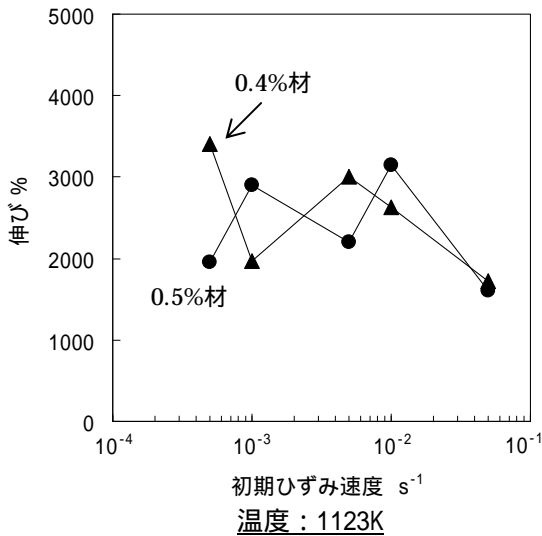


図7 伸びに及ぼす初期ひずみ速度の影響

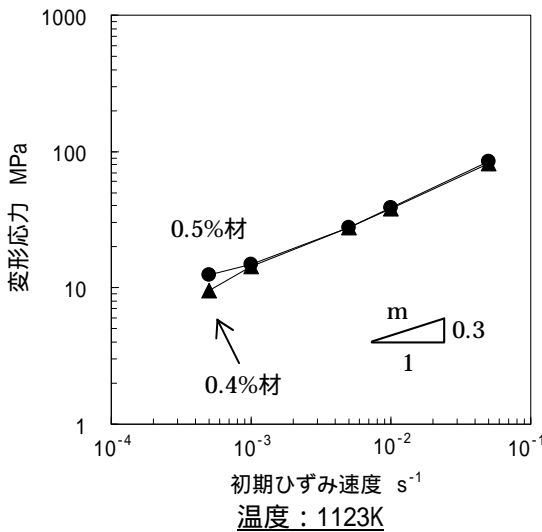


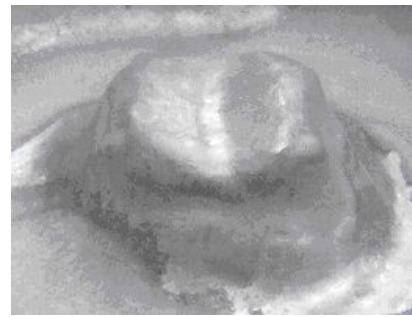
図8 変形応力に及ぼす初期ひずみ速度の影響

(2) 超塑性加工によるメタルフレームの試作加工圧力の影響

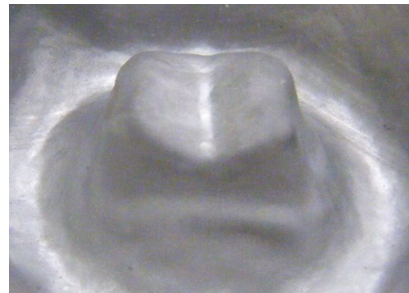
水素吸蔵量：0.4%で水素処理を行った試料から超塑性加工用薄板を切り出し、温度を1123Kにて加工圧力を変化させて試作したメタルフレームの外観を図9に示す。圧力1.0MPaでは頭頂部の形状や輪郭が明瞭に現れなかったが、圧力を1.5MPaとすることで頭頂部だけではなく、サイドのカットラインもはっきり現れ、外観上ではあるが良好なものが得られた。しかしながら、2.0MPaとすると一部が破断し、加工はできなかった。以上の結果より、最適加工圧力は1.5MPaであると考えられる。

保持時間の影響

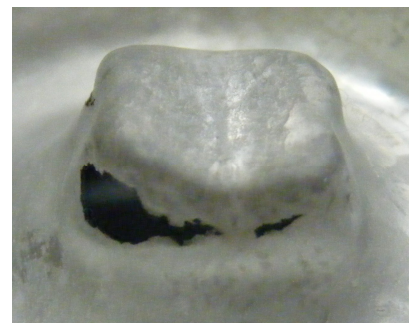
温度：1123K、圧力：1.5MPaとし、保持時間を変化させて試作したメタルフレームの外観を図10に示す。保持時間3.6ksでは頭頂部の形状や輪郭が明瞭に現れなかったが、



(a)加工圧力：1.0MPa



(b)1.5MPa



(c)2.0MPa

温度：1123K、保持時間：10.8ks

図9 メタルフレーム成形性に及ぼす加工圧力の影響

保持時間を10.8ksとすることで頭頂部だけではなく、サイドのカットラインもはっきり現れ、外観上ではあるが良好なものが得られた。しかしながら、18.0ksとすると一部が破断し、加工はできなかった。以上の結果より、最適保持時間は10.8ksであると考えられる。

メタルフレームの断面板厚

温度1123K、圧力1.5MPa、保持時間10.8ksの条件で試作したメタルフレームの断面板厚を調べた結果を図11に示す。このように1、5、9の箇所では400μm以上の厚さがあるものの、2や8の箇所では100μm未満の厚さしかなかった。このことから、板厚の均一性にはやや問題があることがわかった。今後、板厚が均一になるための条件探索が必要である。



(a)保持時間：3.6ks



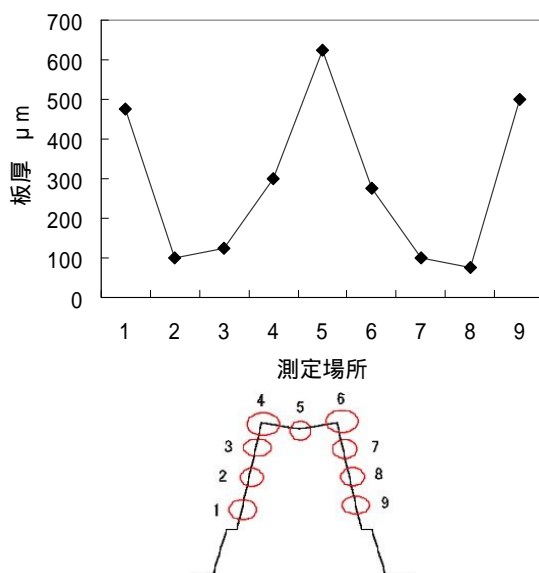
(b)10.8ks



(c)保持時間：18ks

温度：1123K、圧力：1.5MPa

図 10 メタルフレーム成形性に及ぼす保持時間の影響



測定場所（メタルフレーム断面）

図 11 試作したメタルフレームの断面板厚

(3) 結論

本研究では水素処理による微細粒 + 型 Ti-6Al-4V 合金の超塑性に及ぼす水素吸蔵量 (0.4wt.%, 0.5wt.%) の影響を明らかにするため、水素処理における水素吸蔵量の異なる試験片を用いて超塑性引張試験を行った。また、この結果から 0.4%材を用いることを決定し、メタルフレームの超塑性加工条件の探索を行った。以上の結果を統括すると以下ようになる。

水素処理を水素吸蔵量 0.4wt.% 及び 0.5wt.% で行った試験片を用いて超塑性引張試験を行ったところ、伸びはいずれも 1500% 以上を示した。しかしながら 0.5%材においては、試験後の試験片の一部に不均一変形領域が確認された。このことから、メタルフレーム薄板における最適水素吸蔵量は 0.4% である。

変形応力については 0.4%材、0.5%材ともほとんど同じ値を示した。

ひずみ速度感受性指数 (m 値) は全初期ひずみ速度領域で 0.3 以上であったため、超塑性が発現したといえる。

超塑性におけるメタルフレームの最適加工条件の探索をした結果、温度 1123K、保持時間 10.8ks、加工圧力 1.5MPa の条件で加工したものは外見上良好な結果が得られたが、断面板厚を計測した結果、板厚がやや不均一であり、今後さらなる最適条件の探索が必要である。

6. 研究組織

(1) 研究代表者

中東 潤 (NAKAHIGASHI, Jun)

福山大学・工学部・准教授

研究者番号：40341200