

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 2 年 6 月 26 日現在

機関番号：82118

研究種目：挑戦的研究(萌芽)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K18787

研究課題名(和文)電子ビーム積層造形法を利用した革新的な高靱性タングステン材料の研究

研究課題名(英文)Fundamental research to manufacture ductile tungsten by electron beam melting

研究代表者

牧村 俊助(Makimura, Shunsuke)

大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構・素粒子原子核研究所・技師

研究者番号：10391715

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 5,000,000円

研究成果の概要(和文):本研究内では、純タングステンを電子ビーム積層造形法によって製造するための基礎研究を行った。電子ビーム積層造形法による製造では、積層条件を最適化する事によって直径10mm、高さ10mm程度の円柱の造形に成功した。不純物酸素・窒素濃度の測定を行ったところ、どちらも測定限度以下(5 ppm以下)であることが明らかになり、本手法が不純物除去に効果的であることが確認できた。製造試料に関して四点曲げ試験を実施し、長手方向が積層方向に対して平行な試料は垂直な試料よりも強度も高く剥離破壊を示すことが明らかになり、擬延性を獲得できる可能性を示した。相補的な手法として真空内でのレーザー積層造形も行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

タングステンは、他の材料のはるかに及ばない優れた耐熱性能(高融点、低熱膨張率、高熱伝導率)、高密度、耐スパッタ性能のために、高熱負荷極限材料への採用が期待されている。しかし、超高温環境下では、タングステンの脆いという性質(脆性)のため強度が必要な構造材料として使用出来ない。タングステンの脆性は、結晶粒の間の界面(粒界)が弱く、粒界に沿って割れやすいことに起因する。しかも不活性ガスであるアルゴンや窒素等の侵入性ガスの混入ですら亀裂の起点となり脆性を促進する。電子ビーム積層造形法にて、不純物を排除し、亀裂の進展を妨げるような粒界配向を制御したタングステン材料の製造の可能性を示した。

研究成果の概要(英文): In this proposal, a fundamental research for fabrication of pure tungsten by the electron beam additive manufacturing method was conducted. In the method, we succeeded in producing a cylinder with a diameter of 10 mm and a height of 10 mm by optimizing the melting conditions. The measurement of impurity oxygen and nitrogen concentrations revealed that both were below the measurement limit (5 ppm or less), and it was confirmed that this method was effective for removing impurities. A four-point bending test was conducted on the fabricated samples. It became clear that the sample whose longitudinal direction was parallel to the columnar-structure direction had higher strength than the perpendicular sample and showed delamination fracture. It is indicating the possibility of obtaining pseudo-ductility. Laser additive manufacturing method in vacuum was also performed as a complementary method.

研究分野：加速器標的

キーワード：タングステン 脆性 積層造形

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

タングステンは、他の材料のはるかに及ばない優れた耐熱性能(高融点、低熱膨張率、高熱伝導率)、高密度、耐スパッタ性能のために、高熱負荷極限材料への採用が期待されている。しかし、超高温環境下では、タングステンの脆いという性質(脆性)のため強度が必要な構造材料として使用出来ない。タングステンの脆性は、結晶粒の間の界面(粒界)が弱く、粒界に沿って割れやすいことに起因する。このため、従来、圧延等の強加工によって粒界の配向を制御し、亀裂が粒界に沿って伝播し難い加工組織とする。この強加工によって脆性は改善できるが、変形が加えられた強加工組織は歪エネルギーが高いため、融点(3420)よりはるかに低い再結晶温度(1300)以上で再結晶を起こして、粒界配向が消失し著しい脆化が発生する(再結晶脆化)。また、細い線材(フィラメント等)や薄い板材のみに適用でき、太い棒材や厚い板材には適用できない。再結晶脆化・照射脆化の問題を解決するために、一様な結晶粒を持つタングステンやタングステン合金の開発が進められている。この場合、原料粉末の純化・調合を経て、ホットプレス(HP)法や熱間等方圧加圧(HIP)法等の高温加圧焼結処理を行う。しかし、不活性ガスであるアルゴンや窒素等の侵入性ガスの混入ですら気孔を材料中に生成し、亀裂の起点となり脆性を促進する。

一方で断面形状を積層していくことで立体物を作成する電子ビーム積層造形法は、真空中で材料溶融前に予熱を加える事によって不純物ガスの混入を避けられ、原料粉末の純化・調合過程で起きる侵入性ガスを排除出来る。さらに、結晶組織の制御を行う事によって、亀裂の進展を妨げるような粒界配向を制御した組織制御タングステン材料を製造できる可能性がある。本研究内では電子ビーム積層造形技術を用いてタングステンが持つ脆性を克服した高靱性なタングステンを製造するための基礎研究を展開する。

### 2. 研究の目的

本研究内では、純タングステンを電子ビーム積層造形法によって製造するための基礎研究を行う。電子ビーム積層造形法にて、不純物を排除したタングステンを製造の実現可能性を確認する。また、亀裂の進展を妨げるような粒界配向を制御した組織制御タングステン材料の製造に挑戦する。

### 3. 研究の方法

電子ビーム積層造形法によるタングステン材の製造を実現するため基礎実験を実施する。積層造形を行う相補的な手法として真空中のレーザー溶融積層実験による基礎実験を行う。それぞれの手法で溶融焼結するための最適な照射条件を得て、積層造形を行い、積層試料の評価を行う。

### 4. 研究成果

#### (1) 電子ビーム積層造形

シングルビードでの溶融試験から電子ビームの走査条件を最適化した。タングステン粉末は流動性が良くないことが明らかになったので、流動性の確認を行った。また、溶融焼結に必要な電気抵抗の測定をおこなった。平均的に電子ビーム積層造形に利用される金属の電気抵抗と比較して高めであることが明らかになった。

電子ビーム積層造形法による製造では、積層条件を最適化する事によって直径 10mm、高さ 10mm 程度の円柱の造形に成功した(図1)。積層造形品の断面観察によると積層方向に伸びる柱状組織が形成されている。不純物酸素・窒素濃度の測定を行ったところ、どちらも測定限度以下(5 ppm 以下)であることが明らかになり、本手法が粉末冶金法と比較しても、不純物除去に効果的であることが確認できた。また、積層造形品の機械特性の積層方向依存性を四点曲げ試験によって計測した(図2)。0.5 h×2.4 w×5.0 mm の試料に関して上部支点間距離 0.8 mm、下部支点間距離 3.0 mm、クロスヘッド速度 0.06 mm/min、使用ロードセル 1kN で計測を行った。各条件に対して、それぞれ 3 本の曲げ試験片を準備した。四点曲げ試験試料の長手方向が積層方向に対して平行な試料と垂直な試料では明確な違いが観測された(表1)。試料の長手方向が積層方向に対して平行な試料では、柱状組織が亀裂の進展を抑制するため、他の方向に比較して高い強度を示すと同時に剥離破壊を起こした。この結果は、柱状組織を微細化出来れば靱延性を獲得できる可能性を示しており、本研究で目標とする高靱性化への方向性を見出すことが出来た。



図1:電子ビーム積層造形法によって製造に成功したタングステン材

表 1 : 電子ビーム積層造形法で製造された試料の四点曲げ試験結果

	A	B	C
平均曲げ強度 (MPa)	193.2	245.0	648.4
標準偏差 (MPa)	36.8	65.2	41.8

### (2) 真空レーザー積層造形

始めに粉末の高密度、タップ密度、安息角、粒度分布の確認を行った。粉末はアライドマテリアル粗粒タングステンを使用した。高密度、タップ密度は、タングステンバルクの密度 (19.2 g/cc) に対して、約半分の 9.33 g/cc、10.5 g/cc であった。安息角は 32.5 度であった。粉末の粒度分布は 80 μm を中心に幅広く広がっていた。真空中 ( $1 \times 10^{-2}$  Pa より低圧力) のレーザー積層造形に関しても最適な条件を探索した。レーザー強度と走査速度によって多層積層可能な条件を調査したところ、一定強度 (400 W) 以上で積層可能だが走査速度は速すぎても、遅すぎても積層出来ない。溶融積層物を走査型電子顕微鏡で観察すると、部分的に溶融していることが確認できるが、一部に未溶融部分と亀裂部分が観測できた。

原材料粉末をふるいによって 50 μm 以上の粉末を排除して粒度を揃えると、速い速度で積層出来るようになるが、積層可能な走査速度の範囲は狭い。現段階では積層造形品は多孔質であり、最適化が必要と考えられる。積層中は積層造形品が赤熱しているため、冷却効率の向上が必要と考えられる。

なお、真空中のレーザー積層造形に関しては、東京電機大学学部生の卒業論文のテーマとして受理された。

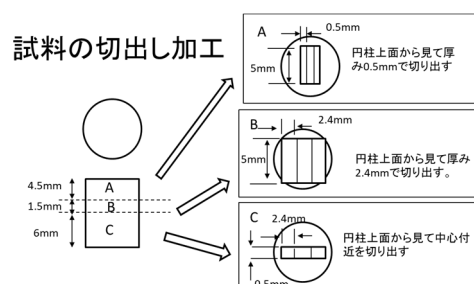


図 2 : 四点曲げ試験に使用した試料の切出し

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 牧村俊助、石田卓	4. 巻 第36巻3号
2. 論文標題 メガワット大強度陽子ビーム運転に向けた二次粒子生成標的・ビーム窓開発の現状と動向	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 高エネルギーニュース	6. 最初と最後の頁 109-117
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 牧村俊助, 栗下裕明, 原田正英, 河村成肇, 的場史朗, 三原智, 牧宗慶, 新倉高一, 鄭憲採, 長澤豊, 尾ノ井正裕	4. 巻 Vol. 95 No.8
2. 論文標題 大強度陽子加速器標的材・遮へい体として 期待されるタングステン	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 J. Plasma Fusion Res.	6. 最初と最後の頁 365-369
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 河村成肇、牧村俊助	4. 巻 2019年秋号No. 50
2. 論文標題 MLF 第2ターゲットステーションにおけるミュオンビームライン	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 日本中間子科学会誌めそん	6. 最初と最後の頁 9-12
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計12件（うち招待講演 5件/うち国際学会 5件）

1. 発表者名 牧村俊助
2. 発表標題 大強度陽子加速器における先端標的・窓材料のワークショップの目的
3. 学会等名 大強度陽子加速器における先端標的・窓材料のワークショップ
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 佐藤直子
2. 発表標題 レーザー積層造形法によるタングステン製造
3. 学会等名 大強度陽子加速器における先端標的・窓材料のワークショップ
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 青柳健大、千葉晶彦
2. 発表標題 電子ビーム積層造形法によるタングステン製造
3. 学会等名 大強度陽子加速器における先端標的・窓材料のワークショップ
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Shunsuke Makimura
2. 発表標題 R&D on graphite-based oxidation resistant materials and radiation resistant tungsten
3. 学会等名 The High Power Targetry R&D Roadmap for High Energy Physics Workshop, Chicago, USA (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Shunsuke Makimura
2. 発表標題 High Power Targets at J-PARC -For further collaboration with nuclear fusion community
3. 学会等名 3rd Japan-Korea Joint Workshop for Fusion Material Technology Integration and Engineering, Busan, Korea (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 牧村俊助
2. 発表標題 中性子・ミュオン源タングステン回転標的 & ミュオン源に関して
3. 学会等名 量子ビームサイエンスフェスタMLF将来計画検討会、水戸、茨城
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 牧村俊助
2. 発表標題 次世代ミュオン標的材としてのSiC系材料およびタングステン材料の開発
3. 学会等名 MLFシンポジウム、水戸、茨城
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Shunsuke Makimura
2. 発表標題 Status and Future Prospect of Muon Target at J-PARC MLF
3. 学会等名 The 21st International Workshop on Neutrinos from Accelerators, 2019 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Shunsuke Makimura
2. 発表標題 Demands for Thermal Shock Experiments of Pulsed-Muon-Production Target Materials
3. 学会等名 HiRadMat workshop at CERN, 10th July, 2019 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 牧村俊助
2. 発表標題 知らぬが仏で突き進む高エネルギー加速器標的材料研究
3. 学会等名 第17回 日本原子力学会 材料部会 夏期セミナー 2019 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 牧村俊助
2. 発表標題 RaDIATE国際協力による先端加速器生成標的・ビーム窓・ダンプ材料の開発 II ~先端加速器標的環境材料の開発~
3. 学会等名 日本物理学会 2018秋季大会@信州大学
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Shunsuke Makimura
2. 発表標題 TUNGSTEN ALLOY DEVELOPMENT AS ADVANCED TARGET MATERIAL FOR HIGH-POWER PROTON ACCELERATOR
3. 学会等名 RaDIATE collaboration meeting @CERN 2018 (国際学会)
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>大強度陽子加速器における先端標的・窓材料のワークショップを開催  <a href="https://www2.kek.jp/imss/news/2018/topics/0531targetWS/">https://www2.kek.jp/imss/news/2018/topics/0531targetWS/</a></p> <p>西村毅文、清水透, 東京電機大 2019年度 電子・機械工学系卒業論文「タングステンのLSMにおける積層造形」</p>
--

## 6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	千葉 晶彦  (Chiba Akihiko)  (00197617)	東北大学・金属材料研究所・教授    (11301)	
研究分担者	能登 裕之  (Noto Hiroyuki)  (50733739)	核融合科学研究所・ヘリカル研究部・助教    (63902)	
研究分担者	中野 禪  (Nakano Shizuka)  (50357646)	国立研究開発法人産業技術総合研究所・エレクトロニクス・製造領域・研究グループ長    (82626)	
研究分担者	佐藤 直子  (Sato Naoko)  (00712481)	国立研究開発法人産業技術総合研究所・エレクトロニクス・製造領域・研究員    (82626)	