

金属 3D プリンタにより造形された純タングステン材の評価

EVALUATION OF PURE TUNGSTEN MADE WITH METAL 3D PRINTER

渡邊丈晃[#]

Hiroaki Watanabe[#]

Institute of Particle and Nuclear Studies, High Energy Accelerator Research Organization (KEK)

Abstract

A new production target of the secondary particles at J-PARC Hadron Facility is now under development. The new target is planned to be a rotating-disk type with cooling fins, and one candidate material for the target is tungsten because of high density, high thermal conductivity and high strength at high temperature. However, complicated shaping such as cooling fin is very difficult by machining for the tungsten material. One possibility is the metal-additive manufacturing method, i.e., metal 3D printer. If the 3D printer can be applied for the tungsten, complicated shape (or near net shape) seems to be realized. However, concrete data of physical property and mechanical strength are insufficient for the target design. Thus, test specimens made of tungsten were fabricated with the 3D printer, which is laser powder-bed fusion type. In this paper, evaluations of the test specimens are reported.

1. ハドロン 2 次粒子生成標的

ハドロン実験施設では、30 GeV の 1 次陽子ビームを 2 次粒子生成標的 (以下、標的) へ照射し、そこで発生する 2 次粒子 (K 中間子、 π 中間子など) を実験エリアへ輸送しており、各実験エリアでは K 中間子などを使ったバラエティーに富んだ原子核・素粒子実験が実施されている (Fig. 1)[1]。現行の標的は純金製となっており、金が銅ブロックに接合された固定型である。冷却は銅ブロックに冷却水配管を接合して銅経由で冷却する間接冷却方式となっており、5.2 秒サイクルで最大約 95 kW の 1 次陽子ビーム強度まで対応している[2-3]。現行の標的は、2020 年から運用を始め、2021 年に 64 kW の安定したビーム運転を達成している。

現行の固定型標的の場合、ビームによる熱負荷が定位置となるのが冷却の限界を決めており、100 kW を超えるビームを受けることが困難である。そこで、熱負荷を円周方向に分散させることのできる回転円盤型標的の開発を進めている[3-5]。この円盤の素材候補としては、高密度、高熱伝導率、高強度な金属が望ましく、金やプラチナのほかに、タングステンがその候補となっている。円盤は、大きい方が熱負荷を分散できるため有利であり、標的容器との取り合いから外径 346 mm、2 次ビームラインの光学から厚さ 66 mm と設計されている。また、円盤はヘリウムガス吹付による直接冷却方式をベース案としており、このため表面積を増やすとともに、ガス流動を促進し熱伝達を向上させる観点から、ビームが照射されない内周側は Fig. 2 に示すようなフィン形状をベース案としている。標的素材として金またはプラチナを採用した場合、内周側に熱伝導率のより無酸素銅をもって来る計画となっており、実際に銅であればフィン形状の機械加工が可能であることが実証されている[2]。一方、タングステンの場合は、内周側に銅とすると線膨張係数の差から熱応力が高くなるため、同じ素材(タングステン)の一体構造を想定している。しかし、純タングステンの機械加工は難

しく、Fig. 2 のようなフィン加工は極めて困難である。

そこで、1つの方向性として、金属積層造形法(金属 3D プリンタ)によりタングステンを造形する方式が適用可能か検討することとした。仮に 3D プリンタによる造形が可能であれば、Fig. 2 よりも複雑な 3 次元的な構造のフィン形状が実現可能となり、冷却能力が向上する可能性を秘めている。しかし、純タングステンは高融点金属であり、かつ熱伝導率が高く、また他の金属と比べて延性が低いなどの理由で 3D プリンタによる造形とは相性が悪い素材であると考えられている。また現状としては、物性や強度といった基礎的なデータも十分に明らかとされてない。そこでまずは試験的に汎用 3D プリンタにより純タングステンの造形を行い、基礎的な評価を実施した。本論文では、その評価結果を報告するものである。

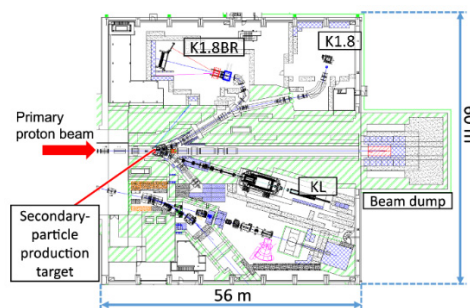


Figure 1: Plan view of the Hadron Experimental Facility at J-PARC.

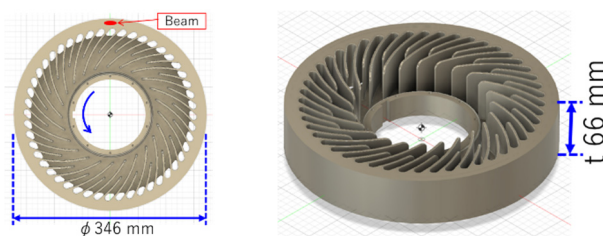


Figure 2: Schematic drawing of the prototype model for the rotating-disk-type production-target.

[#]nabe@post.kek.jp

2. 3Dプリンタによる試験片の製作

金属積層造形法（3Dプリンタ）にはいくつかの方式があるが、本研究では現時点で最も普及しているレーザー照射型パウダーベッド方式により造形をおこなった。この方式は不活性ガス中で薄く金属粉末を敷きレーザーを照射して熔融・凝固させるプロセスを繰り返すことで積層し造形する方式である(Fig. 3)。今回の試作で使用した3Dプリンタは、Concept Laser Mlab 200R（現GE社）で、レーザー出力は最大200Wである。ここでは不活性ガスとしてはアルゴンガスを使用している。レーザーの照射条件はなるべくタングステン密度が高くなるよう施工者側で照射パラメータ調整を行ったものである。使用した素材（粉末）は、日立金属製ADMUSTER RP01で、タングステン純度99.9%以上（鉄0.1%未満）、平均粒径(D50)は約11 μm で3Dプリンタ用に流動しやすいようプラズマ球状化法にて球状成形処理を施されたものである。

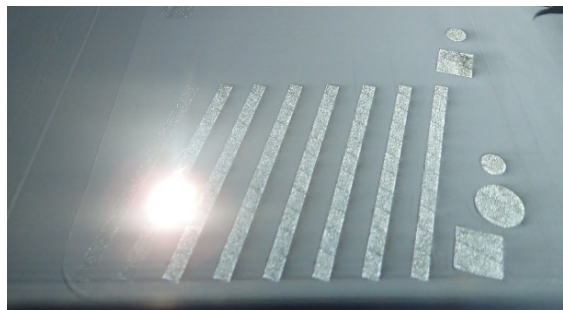


Figure 3: Photograph during metal-additive manufacturing (3D printing) for the test specimen.

回転円盤型標的への適用を想定すると、物性としては密度および熱伝導率が重要であり、機械特性としては強度が重要となる。ここでは、単純な形状を造形し(Fig. 4)、そこから機械加工により試験片を切り出すこととした。密度および熱伝導率の測定用として、Fig. 5に示すように外径10 mm、厚さ2 mmの円柱板状、あわせて比熱の測定用として外径5 mm、厚さ1 mmの円板形状の試験片を製作した。機械強度の評価としては、比較的簡便に実施可能なシャルピー試験を実施することとし、JIS Z-2242に規定される長さ55 mm、幅10 mm、板厚2.5 mm(サブサイズ)とし、中央にVノッチをいれるものとした(Fig. 6)。また、上記とは別に断面観察用として10x10x10 mm³の試験片を同時に造形している。

上記試験片の一部については、積層造形で発生しやすい内部欠陥の改善を期待して、熱間等方加圧法(HIP)による処理を施している。具体的には不活性ガス中でカプセル材なしの状態で176 MPa、1850°C(炉設定)にて3時間の処理を施している。HIP処理を施した試験片の結果は表中および図中で“pure-W(AM) with HIP”と記載している。

3Dプリンタ造形材と比較するために、通常製法（市販）の純タングステンの圧延材または鍛造材（表中・図中でpure-W (conventional) と記載）、および通常製法のタングステン合金（焼結材）としてW:97%, Ni:2%, Cu:1%の合金材（表中・図中でW-alloy (conventional)と記載）についても合わせて評価を行っている。今回評価した供試材の省略名との対応をTable 1にまとめている。

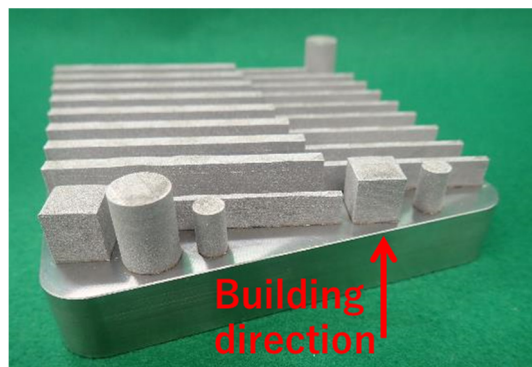


Figure 4: Photograph of pure-tungsten materials for test specimen.

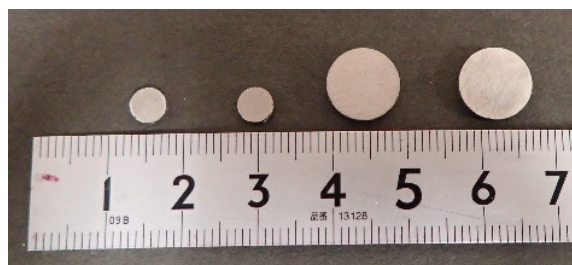


Figure 5: Photograph of the test specimens for physical-property measurements.

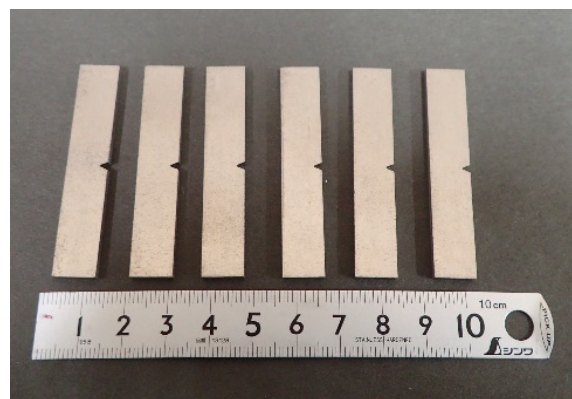


Figure 6: Photograph of the Charpy-impact-test specimens with a dimension of 10-mm wide (for impact direction), 55-mm long and 2.5-mm thick. The V-notch is 2-mm depth.

Table 1: Lists of Materials for the Test Specimen

Name for test specimen	Material description
Pure-W (AM)	Pure tungsten (>99.9%) made by the metal-additive manufacturing (3D printing).
Pure-W (AM) with HIP	Pure tungsten (>99.9%) made by the metal-additive manufacturing (3D printing). After machining, HIP (176MPa, 1850°C, 3h) was processed.
Pure-W (conventional)	Pure tungsten (>99.9%) made by the conventional method (including rolling or forging process).
W-alloy (conventional)	Tungsten alloy (W-97%, Ni-2%, Cu-1%) made by the conventional method (sintered material).

3. 評価結果

3.1 断面観察

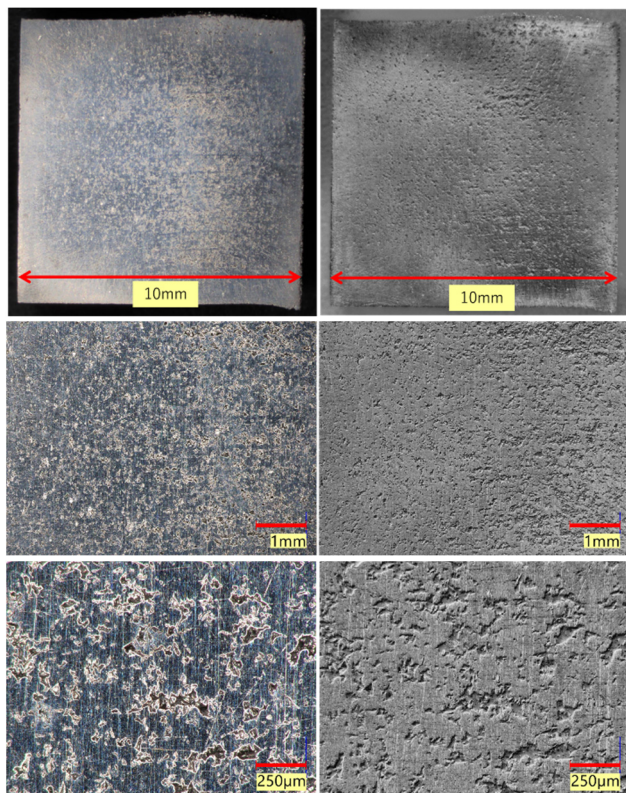


Figure 7: Surface images of Pure-W (AM) for cross-sectional observation. Left images show optical photograph, and right images show SEM-like images. Lamination is left-right direction on the image. As a result, structure with many voids (cavities) was observed on the surface.

3Dプリンタで造形された素材から切り出した $10 \times 10 \times 10 \text{ mm}^3$ の観察片の1面を研磨・洗浄後にマクロ観察した画像を Fig. 7 に示している。積層方向は画像の左右方向の向きである。また Fig. 7 の左列が光学写真、右列が陰影(深さ)を見やすく処理した画像(SEM-like image)となっている。画像をみてわかるように全面的に空乏(ポイド)が形成されており、このような構造がどの断面層にも観察される。空乏の深さは、典型的には $1 \mu\text{m} \sim 10 \mu\text{m}$ のレベルで、時折 $100 \mu\text{m}$ 程度の深さのものも散見された。また、積層に平行な面も同じ程度の密度で空乏(ポイド)が観察された。

HIP 処理を施した素材についても、このマクロレベルで見える空乏構造は大きな変化がなく、HIP 処理によって改善しないことが分かった(Fig. 8)。

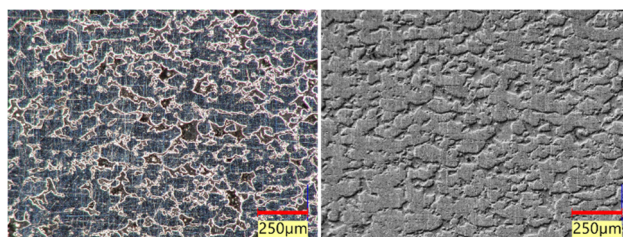


Figure 8: Surface images of Pure-W (AM) with HIP. No improvement, such as reduction of voids, was observed with the HIP process.

3.2 物性値の測定結果

物性値として室温で密度、比熱および熱伝導率の測定結果を Table 2 に示す。密度および熱伝導率は 25°C の測定値、比熱は 21°C の測定値である。密度は液中秤量法により測定し、比熱は示差走査熱量測定法(DSC法)により測定したものである。熱伝導率はレーザーフラッシュ法により円板の厚さ方向(積層方向)の熱拡散率を測定し、そこに上記で測定した密度および比熱の測定値を乗じて算出したものである。

結果として、3Dプリンタで造形された純タングステンの密度は、通常製法(鍛造材: 19.2 g/cm^3)と比べると 89% となっており、HIP 処理を施すと 92% と若干回復している。この密度は通常製法の合金材よりも低い密度となっている。3Dプリンタで造形された純タングステンの熱伝導率は、通常製法と比べると約 60% 、HIP 処理を施すと約 69% となっており、これは合金材と同等レベルであった。

3Dプリンタで造形された供試材が通常製法よりも密度および熱伝導率が低いのは、前節に示した断面観察にあるよう、比較的マクロなサイズの内部空乏が原因であると推察される。HIP 処理により密度等が若干回復しているのは、よりミクロなレベルの欠陥の修復によるものと推察している。HIP 処理で若干回復していることから、3Dプリンタで造形後に、通常製法と同じく高温で塑性加工(塑性変形率の大きな鍛造・圧延)を施せば物性値は改善する可能性はあると考えているが、3Dプリンタのメリット(造形能力)が生かされない点が問題である。まずは、レーザー照射条件等の最適化により、マクロなレベルの空乏が低減する方向で、その結果として、物性値も改善する方向を模索することを検討している。

Table 2: Physical Properties of the Test Specimens

	Density [g/cm ³]	Heat capacity [J/g/K]	Thermal conductivity [W/m/K]
Pure-W (AM)	17.0	0.139	100
Pure-W (AM) with HIP	17.7	0.135	115
Pure-W (conventional, forged material)	19.2	0.141	166
W-alloy (conventional)	18.5	0.132	109

3.3 強度の評価結果

強度の評価として、ここでは室温にてシャルピー衝撃試験を実施した。使用した試験機は、計装型シャルピー衝撃試験機MC-05P-1(前川試験機製作所)を使用し、定格 5 J の設定である。測定結果を Table 3 に示す。表中の誤差は、純タングステン4つの試験片の測定値のバラつき(標準偏差)を示しており、合金材(W-alloy)のみ3つの試験片の偏差を示している。なお、加工の都合により、合金材のみ V ノッチの角度が異なるため、合金材の結果は参考値扱いとしている。また、試験結果として、すべての試験片について、100%脆性破壊であった。次に、Fig. 9 には、衝撃を与えた際の荷重-変位のデータ(各材料につき 1 サンプル)を示している。シャルピー衝撃試験で算出される吸収エネルギーは荷重-変位線図の面積に相当している。

Table 3 に示しているよう、結果としては、3D プリントで造形された純タングステンの衝撃吸収エネルギーは、通常製法(圧延材)と比べると約 72%であった。また HIP しても吸収エネルギーは変化が見られなかった。現状マクロレベルで観察されている空乏(欠陥)が強度を低減させる主要因と推定しており、強度をもって結合をしている有効断面積が通常製法と比べて 70%程度であることを示唆していると考えている。引き続き、機械強度については引張試験による評価を行うことを検討している。

Figure 10 にシャルピー試験前後の表面マクロ画像を示している。Figure 11 はエッチング後の V ノッチ付近の拡大画像を示しており、これより3D プリントで造形された試験片は欠陥(空隙)を経由して破断しているように観察された。ただし、Fig. 11 ではエッチング処理により欠陥が実際よりも広がっていることに注意が必要である。通常製法の純タングステンでは粒界構造が明確には観察されず破断経路は横断的(直線的)な断裂に見える。粒界構造が見えないのは、通常の純タングステン材では延性を獲得するために塑性変形率の大きな加工(ここでは圧延)を行うため、粒子・粒界構造として強く歪んでいる(延ばされている)ためと考えられる。一方、タングステン合金は、Ni-Cu 合金層(バインダ層)を経由して破断しているのが明確に観察された。

Table 3: Results of the Charpy impact test. The error in the table shows a statistical variation (one standard deviation) between specimens.

	Absorbed energy (± error) [J/cm ²]
Pure-W (AM)	0.97 (±0.09)
Pure-W (AM) with HIP	0.98 (±0.05)
Pure-W (conventional, rolled material)	1.35 (±0.04)
W-alloy (conventional)	1.90 (±0.13)

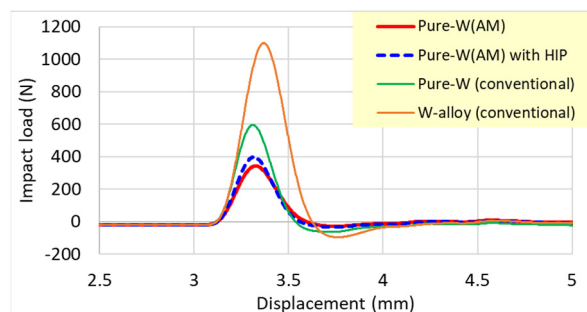


Figure 9: Comparison of the load-displacement curve in the Charpy impact test.

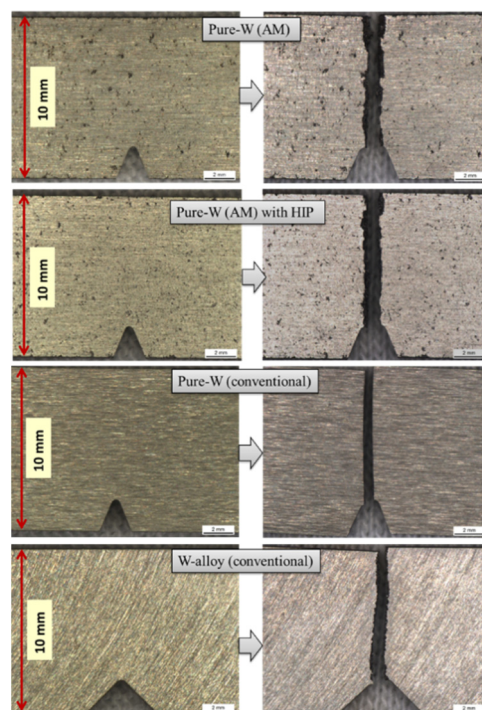


Figure 10: Photographs of the specimens before and after the Charpy impact test.

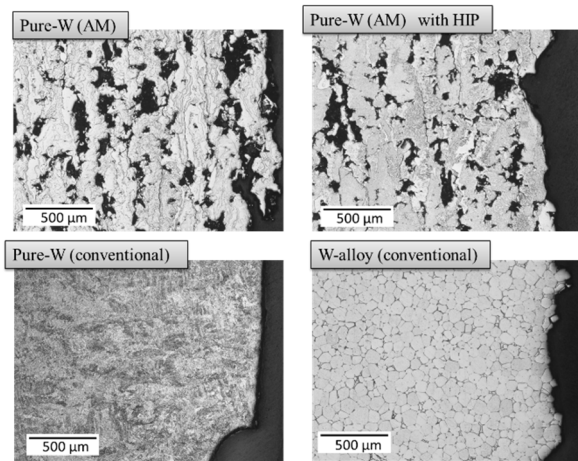


Figure 11: Images of the fracture surface around V-notch of the Charpy-impact-test specimens. These surfaces were obtained by etching process. It should be noted that the cavities (defects) in the top two images were enlarged by etching and thus emphasized.

4. Summary

ハドロン実験施設における2次粒子生成標的への適用可能性を検討する目的で、積層造形法(3D プリンタ)により造形された純タングステン素材の評価を実施した。本研究では、現状として最も普及しているレーザー照射型パウダーベッド方式の3Dプリンタを使用して供試材の製作を行った。現状の結果としては、金属組織内部にマクロレベルの欠陥(空乏)が多数ある状態が観察された。物性値も通常製法の純タングステンと比べると、密度は約89%程度(17.0 g/cm^3)、熱伝導率は60%程度であった。強度はシャルピー試験による吸収エネルギーが約72%程度(100 W/m/K)であった。また、HIP処理により、物性値については多少改善する傾向が見られたものの、本質的な改善にはつながっていないと考えられる。現状は断面観察片にあったように内部にある多数の空隙等を低減させるマクロレベルの改善が必要であると考えられる。文献[6-7]によると、レーザー照射条件のみの調整で密度 $18.5 \text{ g/cm}^3 \sim 18.9 \text{ g/cm}^3$ (通常製法と比較して96~98%)まで改善できる可能性がある。文献[8]によると、粉末の温度を 1000°C 程度に予熱した状態で積層造形を行うことで内部に発生するマイクロクラックが改善(減少)するといった報告がある。これらの文献を参考としつつ、今後は、照射条件などの最適化を進め、強度評価の一環として引張試験について実施を検討している。並行して、造形能力についても、機械加工では難しい3次元的なフィン形状を含む標的モックアップの造形試験を実施する計画である。また、これとは別のアプローチとして通常製法であれば焼結のみ(塑性加工なし)で強度・延性が出せる合金材のほうが積層造形と相性が良い可能性も考えられることから、今後、合金材の積層造形の実証試験についても検討を行っている。

謝辞

本研究は JSPS 科研費 JP21K03609 の助成を受けたものです。

参考文献

- [1] A list of experiments in the J-PARC Hadron-hall: <http://research.kek.jp/group/nucpart/HDeppc/Exp/>
- [2] R. Kurasaki *et al.*, “大強度の遅い取り出し陽子ビームによる二次粒子生成用標的”, Journal of the Particle Accelerator Society of Japan, Vol. 19, Issue 1, pp 225-232 (2022); doi:10.50868/pasj.18.4.225
- [3] M. Saito *et al.*, “Indirectly cooled secondary-particle production target at J-PARC Hadron Experimental Facility”, Phys. Rev. Accel. Beams 25, 063001 (2022).
- [4] R. Kurasaki *et al.*, “J-PARC ハドロンビームライン用回転標的の開発”, Proc. 13th PASJ, Chiba, 949 (2016).
- [5] R. Kurasaki *et al.*, “J-PARC ハドロンビームライン用回転標的の開発(2)”, Proc. 17th PASJ, online, 402 (2020).
- [6] Dianzheng Wang *et al.*, “Dense Pure Tungsten Fabricated by Selective Laser Melting”, Appl. Sci. 2017, 7(4), 430; doi:10.3390/app7040430
- [7] 山本 貴文 他, “純タングステン粉末より作製されたレーザー積層造形体の高密度化挙動”, 日本原子力学会 2019 年秋の大会, 3L09 (2019).
- [8] A. V. Müller, “Additive manufacturing of pure tungsten by means of selective laser beam melting with substrate preheating temperatures up to 1000°C ”, Nuclear Materials and Energy 19, 184-188, (2019); doi:10.1016/j.nme.2019.02.034