

2次粒子生成標的のための金属3Dプリンタにより造形された タングステン材の評価(2)

EVALUATION OF TUNGSTEN MADE WITH 3D PRINTER FOR SECONDARY-PARTICLE PRODUCTION TARGET (2)

渡邊丈晃^{#,A)}

Hiroaki Watanabe^{#,A)}

^{A)} Institute of Particle and Nuclear Studies, High Energy Accelerator Research Organization (KEK)

Abstract

A new production target for secondary particles at the 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 pure tungsten because of its high density, high thermal conductivity, and high strength at elevated temperatures. However, complicated shaping such as bent cooling fins is very difficult by machining for the tungsten material. One possibility is the metal additive manufacturing method, i.e., a metal 3D printer. If the 3D printer can be applied to the tungsten, a complicated shape (or near net shape) seems to be realized. However, the concrete data on physical properties and mechanical strength are insufficient for the target design. Thus, test specimens made of tungsten were fabricated with the 3D printer, which is a laser powder bed fusion type. In this paper, the results of tensile tests and a modeling test 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リエーションに富んだ原子核・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を経由して冷却する間接冷却方式となっており、4.24秒サイクルで最大約115 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、2024年には82 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一定位置となることで冷却の限界を決めており、4.24秒サイクルの場合115 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[4-7]。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、現行の金に加え、プラチナやタングステンがその候補となっている。円盤は、径が大きい方が熱負荷を分散させるため有利であり、標的容器との取り合いから外径346 mmと設定されている。また、2次ビームライン側の光学的な要請から厚さ66 mmと設計されている。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いる。冷却能力の向上のため、表面積を増やすとともに、ガス流動を促進させる観点から、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高い無酸素銅とする設計となっており、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難易度が高い。

そこで金属積層造形法(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[8]。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次元的な曲面をもつ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がある。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[9-10]。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の金属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、前報[8]に引き続き、その評価結果を報告するものである。

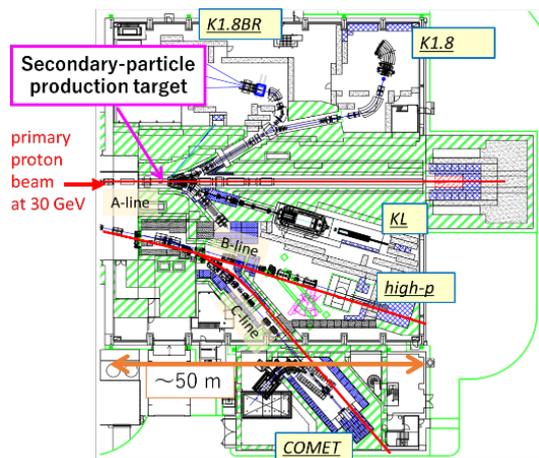


Figure 1: Plan view of the Hadron Experimental Facility at J-PARC.

[#] nabe@post.kek.jp

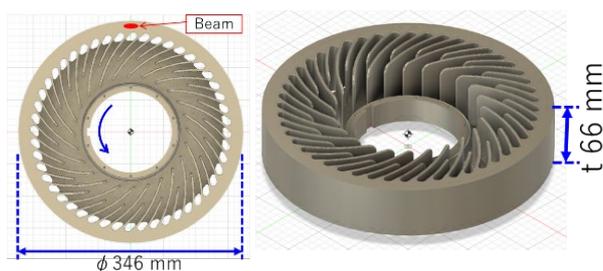


Figure 2: Schematic drawing of the prototype model for the rotating-disk-type production target.

2. 3D プリンタによる試験片の作成

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)。前報[8]の試作で使用した3D プリンタは、Concept Laser Mlab 200R でレーザー出力は最大 200 W に対し、今回の試験片造形で使用したのは EOS M290 で最大 300 W である。ここでは不活性ガスとしてアルゴンガスを使用している。レーザーの照射条件は前報[8]では、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、ここでは試験片では強度を高める(内部欠陥を減らす方向)で造形パラメータを調整したものである(Table. 1)。使用した素材(粉末)は、前回と同じプロテリアル製 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。また、ベースプレート(substrate)はステンレス(SUS316L)で、約 20°C(室温)である。

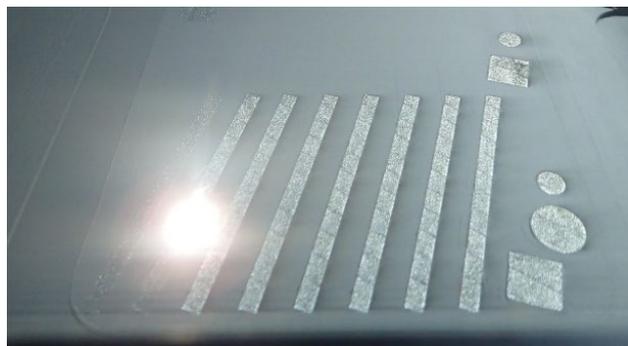


Figure 3: Photograph during additive manufacturing (3D printing) for the previous test specimen reported in Ref. [8].

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。前報[8]では物性値(密度、熱伝導率)、および機械特性としてシャルピー試験の結果を報告した。

ここでは、より一般的な機械強度として引張試験を実施した。なお、前回の試験結果を受けて、前述したとおり造形条件は若干の変更を行ったため、全くの同条件で造形した素材ではないことを注記しておく。

Table 1: Parameters of Additive Manufacturing

| | Current production | Previous Production [8] |
|---|--------------------|-------------------------|
| Laser Power (W) | 300 | 200 |
| Laser Diameter (μm) | 75 | 75 |
| Layer Thickness (μm) | 20 | 15 |
| Scan Speed (mm/s) | 200 | 300 |
| Hatching Spacing (mm) | 0.09 | 0.07 |
| Energy Density (J/mm^3) | 833 | 645 |
| Mean Particle Size (μm) | 11 | 11 |
| Particle Shape | Spherical | Spherical |
| Material of Substrate | SUS316L | SUS316L |
| Temperature of Substrate | 20°C | 20°C |
| Atmosphere | Argon gas | Argon gas |
| Model Name of 3D-printer | EOS M290 | Mlab 200R |

Figure 4 に今回使用した引張試験片を示す。引張試験片の元の素材として、Fig. 4 上段写真に示すように長さ 65 mm、幅 18 mm、板厚 3.5 mm の板材を作成し、そこからワイヤー加工で Fig. 4 中段写真に示す引張試験片の形状とした。板厚は前報[8]シャルピー試験片と同じ 2.5 mm とした。試験片寸法は Fig. 4 下段に示す。

試験片の素材の時点で、その半数については、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は 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 プリンタによる造形材と比較するために、通常製法(市販)の純タングステン圧延材(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)について別途行ったデータを記載する。ただし、合金材の引張試験片の形状は今回の試験片より若干小型のもの(全長 40 mm、板厚 1 mm)を使用している。今回評価した供試材の省略名との対応を Table 2 にまとめている。

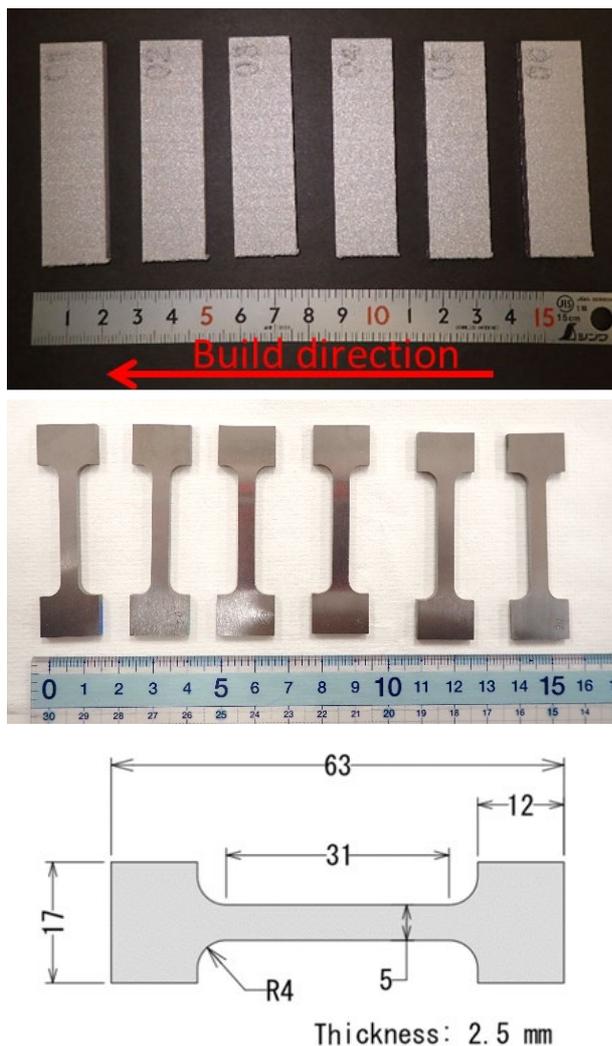


Figure 4: Photographs and dimensions of the tensile-test specimen.

Table 2: Lists of Materials for the Test Specimen

| Name of the test specimen | Material description |
|---------------------------|--|
| Pure-W (AM) | Pure tungsten (>99.9%) made by additive manufacturing (3D printing). |
| Pure-W (AM) with HIP | Pure tungsten (>99.9%) made by additive manufacturing (3D printing). Before machining, HIP (176MPa, 1850°C, 3h) was processed. |
| Pure-W (conventional) | Pure tungsten (>99.9%) made by conventional method (rolled material) |
| W-alloy (conventional) | Tungsten alloy (W-97%, Ni-2%, Cu-1%) made by conventional method (sintered material). |

3. 評価結果

3.1 引張試験結果

引張試験は、島津製作所製 AG-20kNX を使用した。試験片の中央にひずみゲージを貼り付け、ひずみの測定を行った。引張試験で得られた応力-ひずみ線図を Fig. 5 に示す。HIP なしの結果は、引張強度としてはほぼ同じであったが、ひずみ量はサンプルごとのバラつきがやや大きい。これは内部欠陥のバラつきを反映しているものと考えられる。HIP ありは、若干ではあるが引張強度が増している。ただし、ひずみ量が減っており、素材として硬くなる方向である。引張試験の結果を Table 3 に示す。結果として、3D プリンタで造形された純タングステン素材の引張強度、通常製法と比べて約一桁低いことが明らかとなった。HIP 処理を行った試験片では有意に強度が上がっているが、劇的な改善効果は得られないことが示された。

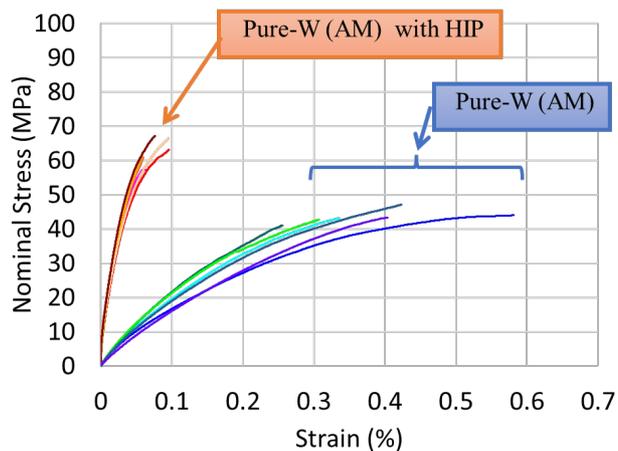


Figure 5: Stress-strain curves for the pure-tungsten specimens at room temperature obtained by the tensile tests. The strains were measured by strain gauges.

Table 3: Results of Tensile Tests at Room Temperature (The error shows a standard deviation between specimens. The strains were measured by strain gauges.)

| | Tensile Strength (nominal) [MPa] | Strain [%] | Young's modulus [GPa] |
|------------------------|----------------------------------|--------------|-----------------------|
| Pure-W (AM) | 44 (±2) | 0.38 (±0.11) | 14 (±2) |
| Pure-W (AM) with HIP | 63 (±4) | 0.07 (±0.02) | 134 (±11) |
| Pure-W (conventional) | 546 (±28) | N/A | N/A |
| W-alloy (conventional) | 669 (±39) | > 1% | 314 (±6) |

Figure 6 に引張試験片の破断面の写真および走査電子顕微鏡による画像(以下、SEM 画像)を示す。破断面は脆性的な破面の様相が観察された。SEM 画像より、HIP 処理ありについて、金属組織が大きく成長していることがわかった。Figure 7 には破断面近傍を側面から見た SEM 画像(エッチング処理後)を示す。HIP 処理により、タングステンの結晶粒が大きく成長していることがわかる。また、その粒界の境界がはっきりと見えており、一部にはき裂的な様相が観察された。HIP なしについても、熔融界面にき裂が多く観察される。このようなき裂が全体の強度を下げていると推察される。

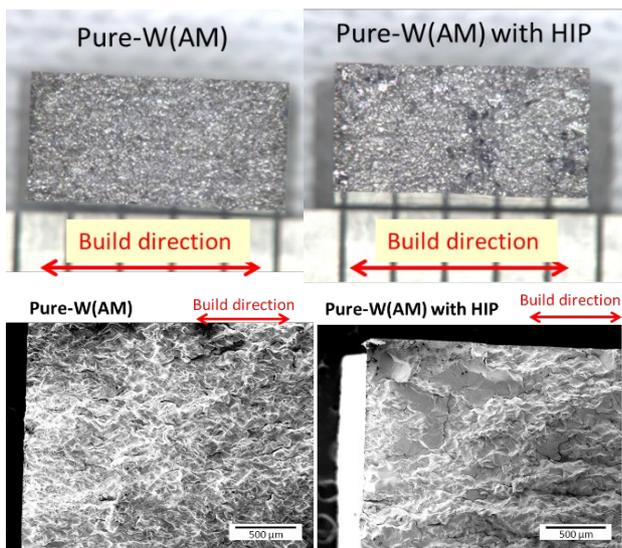


Figure 6: Photographs and SEM-images on the rupture surface after the tensile tests.

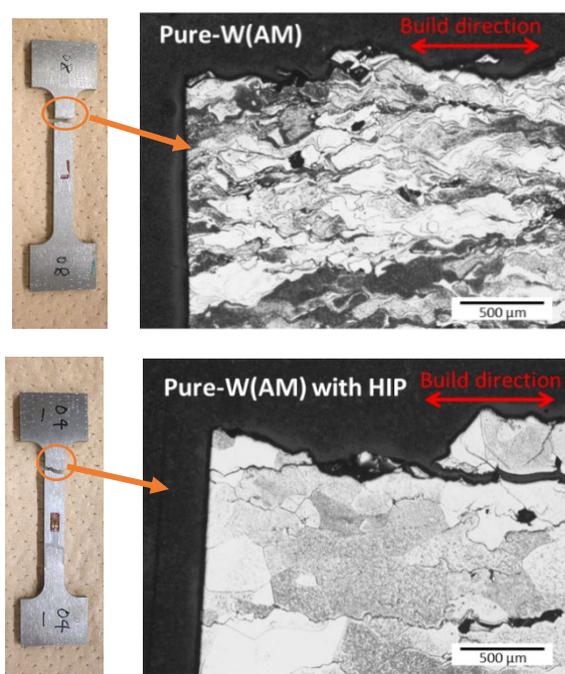


Figure 7: SEM images around the rupture position viewed from the side direction.

3.2 造形能力の評価

造形能力の確認のため、回転円盤標的を想定した造形試験を実施した。造形条件は、引張試験片の条件と同じである(Table 1)。通常の機械加工(フライス加工等)を想定すると、Fig. 2 に示すような垂直なフィン形状が想定される。3D プリンタを想定すると3次的に曲がったフィンが可能となり、ガス流体を駆動する上で高い効果が期待できる。ただし、フィンの角度を大きくする(倒す)方向にすると、3D プリンタの場合は支えるためのサポート材(柱)が必要となる。しかし、純タングステンは機械加工が困難なため、造形後のサポート材の撤去が簡単ではない。そのため、ここではサポート材が不要な範囲で、なるべく大きい倒し角度とすることとし、Fig. 8 に示すような半円形状とした。外径側の方が倒し角度が大きくなるようなフィン形状で、最大で約 33 度となっている。また、フィン厚さは 2 mm とした。

Figure 9 に、造形試験の結果を示す。形状としては、正確に造形ができたことを確認した。フィンの下面および外輪内面の表面には一部、鱗状の破片が残ったが、容易に除去できるものであった。鱗状の破片は、レーザ溶融時に表面で発生するスパッタが原因と推察される。また目視では”き裂”等の大きな欠陥は確認されなかった。以上から、純タングステン材においても標的円盤を想定すると造形能力は十分に高いことが実証された。

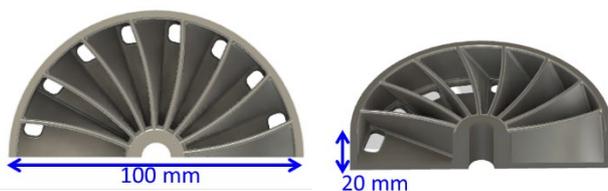


Figure 8: Drawing of the manufacturing test assuming the production-target disk. The fin thickness is 2 mm.

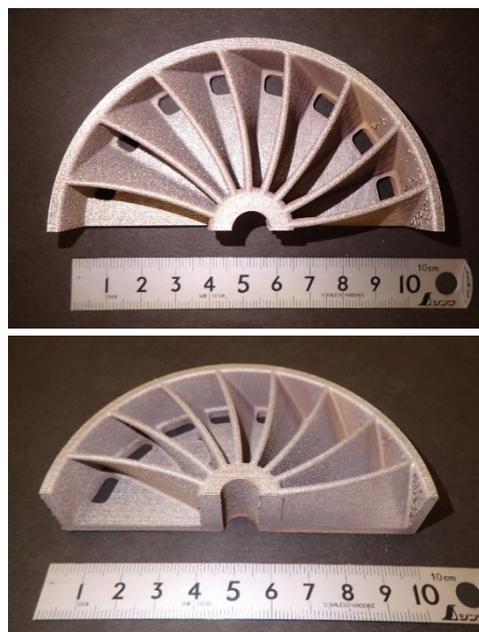


Figure 9: Photographs of the target disk made of pure tungsten with additive manufacturing.

4. 合金材の試作

現状では、前報[8]にもあるよう内部欠陥(空隙、き裂)が多数散見される状態で、標的を想定すると強度は不足している。そのため造形条件を最適化するなどして内部欠陥を減らす必要がある。最近は特に欠陥を減らす方向での研究が進んでおり、数例であるが欠陥無しでの造形報告例が出ている[9, 10]。

欠陥を減らす1つの方策は合金化である。例えば比較材として使用したタングステン合金は、重量比で銅 1%、ニッケル 2%を含んでおり、この合金成分がタングステン結晶同士を接合するバインダーとして働くものである。特に、今回問題となっている純タングステン材の粒界の弱さを補う可能性がある。そこで、試験的に上記組成での合金材について 3D プリンタ(MLab-200R)にて試作を実施したところ、Fig. 10 に示すよう形状としては造形が可能であることが確認できた。合金成分(バインダー成分)が3%と少ないにも関わらず、形状が造形できる点は興味深い。引き続き、合金材の評価を実施する計画である。



Figure 10: Photograph of a test sample with a dimension of $10 \times 10 \times 10 \text{ mm}^3$ made of tungsten alloy (W-97%, Ni-2%, Cu-1%) with additive manufacturing by the MLab-200R.

5. 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、前報[8]と同じく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い、引張試験を実施した。結果として今回の造形条件では、引張強度は通常製法(圧延材)の約1/10と低く、標的といった機械強度を必要とする目的には適用できないがわかった。また、HIP処理により強度は若干上昇するが劇的な改善効果は得られないことがわかった。

並行して、造形能力の確認のため、円盤型標的を想定した造形試験を実施した。特に通常の機械加工では実現が困難な3次元的な曲面をもつフィン形状の試作を

行ったところ、形状としては正確に造形され、純タングステンにおいても高い造形能力があることが実証された。

以上から、高い造形能力は大変魅力的であるが、標的への適用には強度の改善が重要である。そこで、まずは合金化の方向で内部欠陥や強度の改善が可能かどうか評価することを計画している。また、造形中に発生するき裂の低減の観点から、熱応力を低減可能な余熱(preheating)機能をもつ電子ビーム溶融型の積層造形装置による試作試験も検討している。

謝辞

本研究は JSPS 科研費 JP21K03609, 24K07082 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/nuclpart/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, 2022, pp 225-232.
- [3] M. Saito *et al.*, “Indirectly cooled secondary-particle production target at J-PARC Hadron Experimental Facility”, Phys. Rev. Accel. Beams 25, 2022, 063001.
- [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 Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan (PASJ2016), Chiba, 2016, pp949-p953.
- [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 Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan (PASJ2020), Online meeting, 2020, pp402-406.
- [6] H. Watanabe *et al.*, “ハドロン実験施設における回転円盤型2次粒子生成標的のための気体軸受の設計”, Proc. 19th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan (PASJ2022), Online meeting, 2022, pp427-431.
- [7] H. Watanabe *et al.*, “ハドロン実験施設における回転円盤型2次粒子生成標的の開発”, PASJ2024, Yamagata, Japan, Sep-Aug. 2024, WEP091, this meeting.
- [8] H. Watanabe *et al.*, “金属 3D プリンタにより造形されたタングステン材の評価”, Proc. 19th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan (PASJ2022), Online meeting, 2022, pp65-69.
- [9] P. Morcos *et al.*, “Review: additive manufacturing of pure tungsten and tungsten-based alloys”, J. Mater. Sci. (2022) 57:9769-9806.
- [10] L. Howard, “Progress and Challenges of Additive Manufacturing of Tungsten and Alloys as Plasma-Facing Materials”, Materials 2024, 17, 2104