

タフピッチ銅の屈曲特性に及ぼす結晶方位及び結晶粒径の影響

Influence of the Crystal Orientation and the Grain Size on the Flexing Property of Tough Pitch Copper

松尾亮佑*
Ryosuke Matsuo

〈概要〉

タフピッチ銅 (C1100) の屈曲特性に及ぼす結晶方位並びに結晶粒径の影響について調査を行った。同一条件下でIPC屈曲試験を行った結果、{001}<100>方位 (W方位) に配向したサンプルは{001}<110>方位 (NDW方位) 粒の配向したサンプルに対し優れた寿命を示した。試験後の表面観察及び分析の結果、W方位に配向したサンプルに対しNDW方位に配向したサンプルの表面荒れが確認され、一部に破壊起点になると推測されるクラックの存在が確認された。また結晶粒径はランダム配向の場合において、粒径が小さいほど屈曲性能に優れることを明らかにした。

1. はじめに

W方位再結晶集合組織を有するタフピッチ銅 (C1100) は優れた屈曲特性を示すことが知られており¹⁾、フラットケーブルなどに用いられている。そのプロセスは再結晶熱処理前に大きな減面率の冷間加工を施しβ繊維圧延集合組織を十分に発達させた後に、再結晶熱処理を施すことでW方位が配向し粗大に発達した組織とすることができる。

優れた屈曲特性を示す原因としてW方位が屈曲性に有効に寄与するという結果²⁾、特定方位にはよらない高配向の集合組織が高屈曲化をもたらすという結果^{3),4)}、方位集積自体は関係なくそれに伴う結晶粒の著しい粗大化が高屈曲化をもたらすと

いう結果⁵⁾などがあるが、それぞれの影響度合については明確ではない。そこで、本報ではW方位が粗大に配向したタフピッチ銅を中心に屈曲寿命に影響を及ぼす因子を調査し、結晶方位、結晶粒径及びその相互関係について検討した。

2. 実験方法

結晶配向の調査は主に圧延による条サンプルを用いたが、結晶粒径を対象とした実験はその制御がしやすい丸線を圧延したサンプルを用いた。試作のプロセスを表1に示す。No.1は条サンプル、No.2は丸線圧延サンプルである。

表1 評価サンプルのプロセス
Processes of test pieces.

Sample number	Previous Process	Post Process	Sampling Derrections	
1: Strip	1-1	CR (0.17 mmt) → HT (200°C, 2 h) → CR (0.035 mmt) → HT (200°C, 2 h)	0° (Longitudinal is parallel to LD)	
	1-2	CR (0.45 mmt) → HT (200°C, 2 h) → CR (0.035 mmt) → HT (200°C, 2 h)	0°	
	1-3	150 mmt → HR and CR (12 mmt) → HT (general)	CR (0.035 mmt) → HT (200°C, 2 h)	0°
	1-4		CR (0.035 mmt) → HT (200°C, 2 h)	22.5° (rotated on ND axis from 0°)
	1-5		CR (0.035 mmt) → HT (200°C, 2 h)	45.5° (rotated on ND axis from 0°)
	1-6	CR (0.45 mmt) → HT (200°C, 2 h) → CR (0.035 mmt) → HT (700°C, 2 h)	0°	
2: Drawing and rolling	2-1	9 mm φ → CD (0.22 mm φ) → HT (general) →	0°	
	2-2	CR (0.035 mmt, 0.8 mmw) → RT	→ HT (400°C, 2 h)	0°
	2-3		→ HT (500°C, 2 h)	0°
	2-4		→ HT (600°C, 2 h)	0°

HR: Hot Rolling CR: Cold Rolling CD: Cold Drawing HT: Heat Treatment RT: Recrystallization Treatment
mmt: millimeter thickness mmw: millimeter width LD: longitudinal direction ND: normal direction

* 研究開発本部 自動車・エレクトロニクス研究所

No.1 (条) は一般的な熱間圧延後、冷間圧延し軟化熱処理を行った後、W 方位配向率の異なる再結晶材を作製するため、減面率 79, 92, 97% の最終冷間圧延を施して板厚を 35 μm とし、最後に再結晶熱処理を施した。これらの条から圧延方向に切り出した試験片を No.1-1, 1-2, 1-3 とした。更に方位の異なる配向を得るため、減面率 97% の条の圧延方向に対して、22.5 度、45 度方向に切り出し、それぞれを No.1-4, 1-5 とした。図 1 に条のサンプリング方向と、W 方位 (No.1-1 ~ No.1-3)、{001}<210> 方位 (W/NDW 方位) (No.1-4), NDW 方位 (No.1-5) に配向した各サンプルの関係を示す。

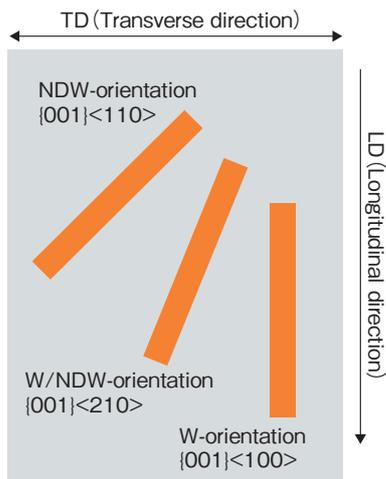


図 1 条のサンプリング方向と各方位に配向したサンプルの関係 Relationship between the sampling directions and the oriented samples of the strips.

また、W 方位への配向を抑えるため、減面率の低い冷間圧延と熱処理を繰り返した後、最後に再結晶熱処理を施した No.1-6 を作製した。なお No.1-6 は、No.1-3 ~ 1-5 の機械的特性と極力合わせるため、再結晶粒を粗大化させる高温熱処理を施した。

No.2 (丸線圧延) は伸線及び焼鈍を繰り返した後、最終の圧延にて厚み 0.035 mm、幅 0.8 mm とし最後に再結晶熱処理を行った (No.2-1)。その後結晶粒径を変えるため、更に 400℃、

500℃、700℃ で熱処理を追加した (それぞれ No.2-2, 2-3, 2-4)。

全てのサンプルは結晶方位並びに結晶粒径を測定するとともに、結晶方位は EBSD 及び付属ソフトにて解析 (EDAX TSL 社製、「Orientation Imaging Microscopy v5」) した。方位解析では許容角を 12.5 度とした。また結晶粒径は IPF 図の切断法により、TD-ND 面もしくは LD-TD 面で結晶直径の平均値とした。

No.1-3, 1-4, 1-5, 1-6 にて引張試験を行ったが、試験片幅は 12.75 mm であり JIS Z 2241 には準拠していない。

また屈曲試験は No.1 では幅 12.75 mm、長さ 120 mm、No.2 では幅 0.8 mm、長さ 120 mm をサンプルとし、IPC 屈曲試験機 (上島製作所製 FT-2130) を用いて行った。試験温度は 85℃、試験条件は屈曲半径 6.3 mm、ストローク ±13 mm である。破断までを寿命としてそれぞれ N=1 ~ 4 で試験し平均値を求めた。図 2 に屈曲運動部分の簡略図を示す。

屈曲試験サンプルの表面は SEM にて観察を行い、表面粗度はレーザー顕微鏡 (KEYENCE VK8510) にて測定した。

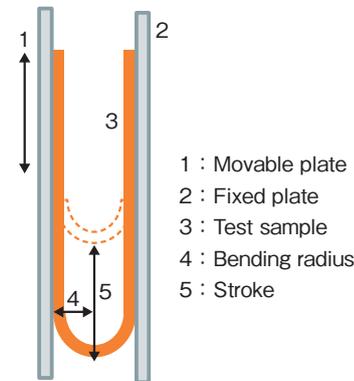


図 2 屈曲運動部分の簡略図 Simplified schematic of the flexion movement.

3. 結果および考察

3.1 再結晶熱処理材の屈曲寿命に及ぼす結晶方位の影響

図 3 に No.1 の W 方位の面積率及び IPF 図を示す。No.1-1,

Sample Number	No.1-1	No.1-2	No.1-3	No.1-6
Area fraction of W-orientation {001}<100> (%)	48	73	97	19
IPF MAP				

図 3 No.1 サンプルの W 方位 {001}<100> の面積率と LD-TD 面の IPF 図 Area fractions in the W-orientation and the IPF maps of the LD-TD plane of sample No.1.

1-2, 1-3, 1-6のW方位の面積率はそれぞれ48, 73, 97, 19%であった。No.1-1, 1-2, 1-3では、結晶粒径は配向度が高いほどW方位が優先成長した粗大粒の割合が増加していることが分かった。またW方位が97%配向したNo.1-3ではLD面で100~300 μm, TD面で30~100 μmの粗大粒が存在することが分かった。これらの結果から、No.1-3, 1-4, 1-5はそれぞれW方位, W/NDW方位, NDW方位が強く配向しているが、これに対してNo.1-6は配向が弱い、即ちランダム配向である。平均粒径は約50 μmであった。

図4にNo.1-1, 1-2, 1-3のW方位の面積率に対する屈曲寿命を示す。No.1-1の寿命は54万回, No.1-2は59万回, No.1-3は100万回到達時点で未破断であったため試験を打ち切った。配向度と屈曲寿命は必ずしも比例関係にはなく、W方位が最も強く配向したNo.1-3では、他よりも各段に優れた寿命を示した。この結果から、W方位以外の結晶方位及び粒径などの影響があると推測される。

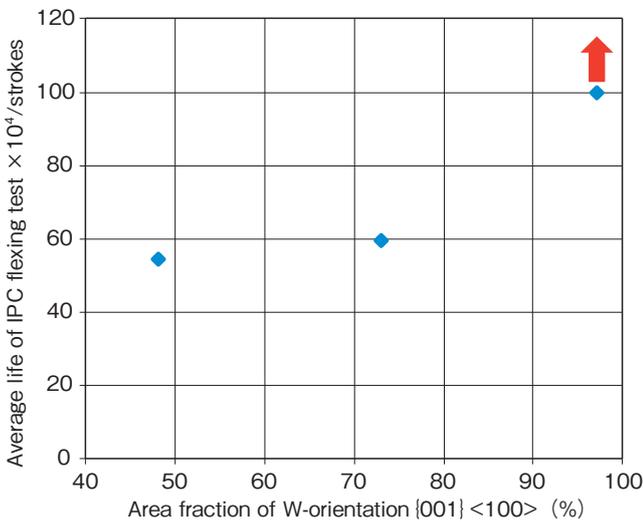


図4 W方位 {001} <100> の面積率とIPC試験の平均寿命
Relationship between the average life measured by the IPC flexing tests and the area fraction of the W-orientation {001} <100> (force-quit at 1.0 × 10⁶ strokes).

表2 No.1の機械的特性
Mechanical properties of sample No.1.

Sample Number	Oriented Crystal	Yield Strength / MPa	Tensile Strength / MPa	Elongation (%)
No.1-3	W-orientation {001} <100>	40	122	6
No.1-4	W/NDW-orientation {001} <210>	35	133	43
No.1-5	NDW-orientation {001} <110>	36	132	31
No.1-6	Non-oriented	43	143	12

表2にNo.1-3, 1-4, 1-5, 1-6の機械的性質を示す。各サンプルを比較すると、強度差は小さいが伸びには大きな差があることが分かった。

図5にNo.1-3, 1-4, 1-5, 1-6の屈曲寿命を示す。W方位 (No.1-3) の屈曲寿命はW/NDW方位 (No.1-4) 及びNDW方位 (No.1-5) が配向した場合に対し、10倍以上であり (なお本試験は途中で打ち切り)、この結果から屈曲寿命はW方位の配向により大きく向上するが、W/NDW方位, NDW方位の配向は寄与していないものと考えられる。すなわち、屈曲寿命は特定結晶粒の高い配向 (この場合、W方位) に依存し、結晶粒径が粗大であっても必ずしも向上しないと結論される。

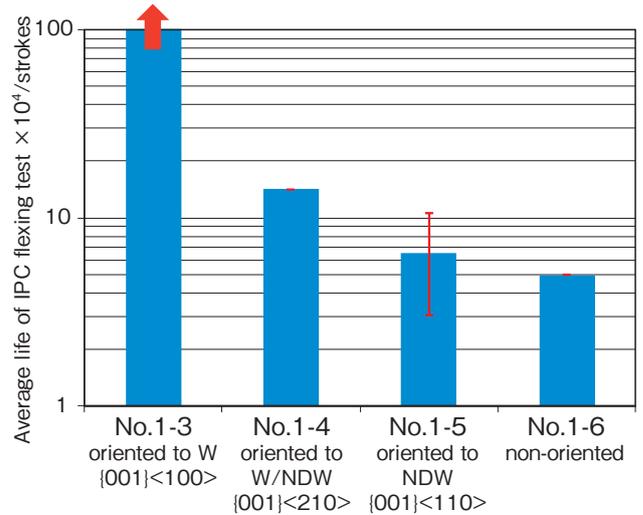


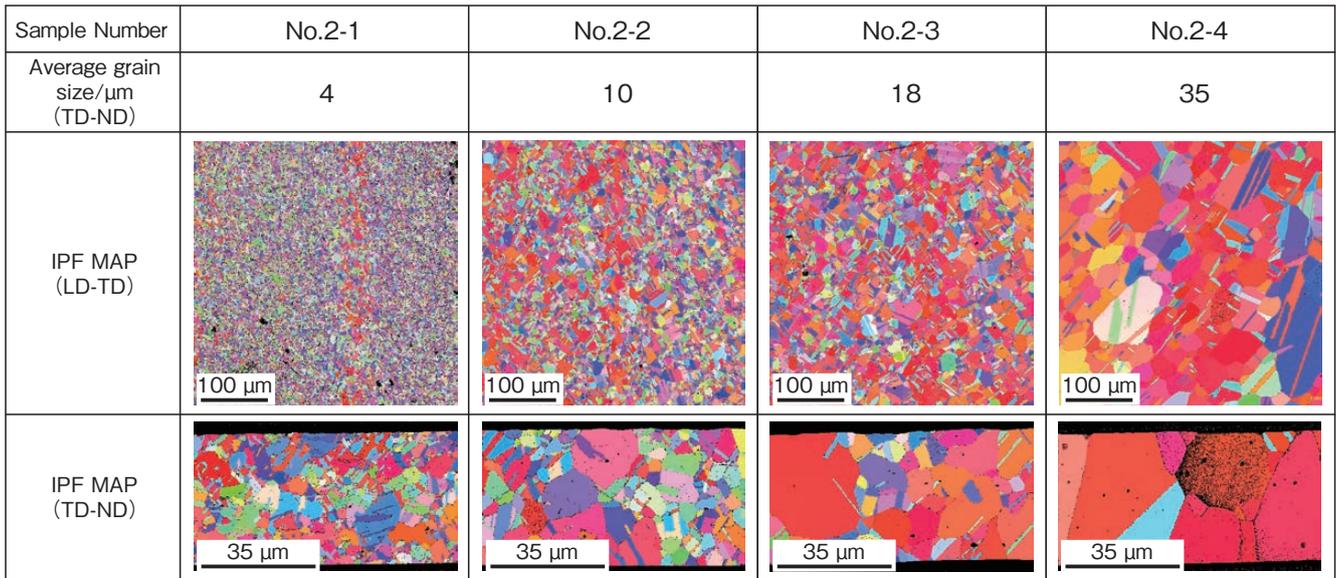
図5 配向が異なるサンプルでの屈曲平均寿命
Average flexing lives measured by the IPC flexing tests on the differently oriented samples (force-quit at 1.0 × 10⁶ strokes).

3.2 再結晶熱処理材の屈曲寿命に及ぼす結晶粒径の影響

図6にNo.2のIPF図、結晶方位及び結晶粒径(LD面, TD面)の測定結果を示す。再結晶熱処理のみの条件と400℃, 500℃, 700℃で2時間の追加の熱処理を行ったサンプルの平均結晶粒径は、それぞれ4, 10, 18, 35 μmであった。また、平均粒径が大きくなると<100>方向の配向が高まる傾向が見られた。しかしながら、特定方位の配向度(面積率)が100%に近いNo.1-3~1-5と比較すると大幅に低いことから、ランダム配向とみなした。

図7にNo.2の屈曲寿命を示す。図から分かる様に結晶粒径が微細であるほど屈曲寿命は向上している。粗大粒を伴う場合は、本試験の条件範囲内では、図4で示したように唯一W方位が配向している場合に屈曲寿命が向上するものと考えられる。この結果から、W方位に配向する粗大粒組織は結晶配向の影響が大きいことが改めて検証されたものと考えられる。

(a)



(b)

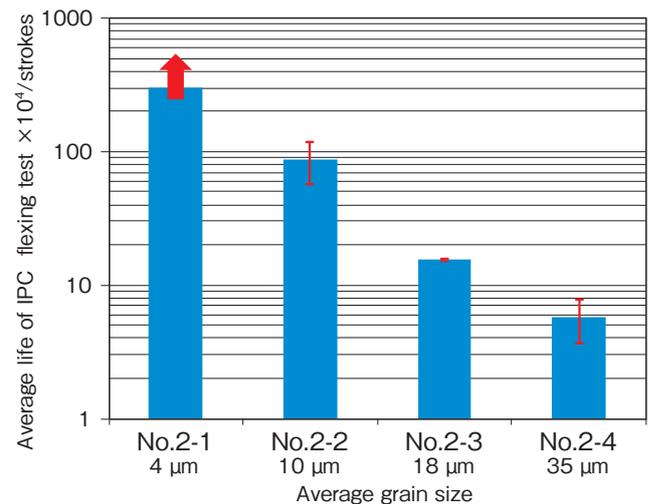
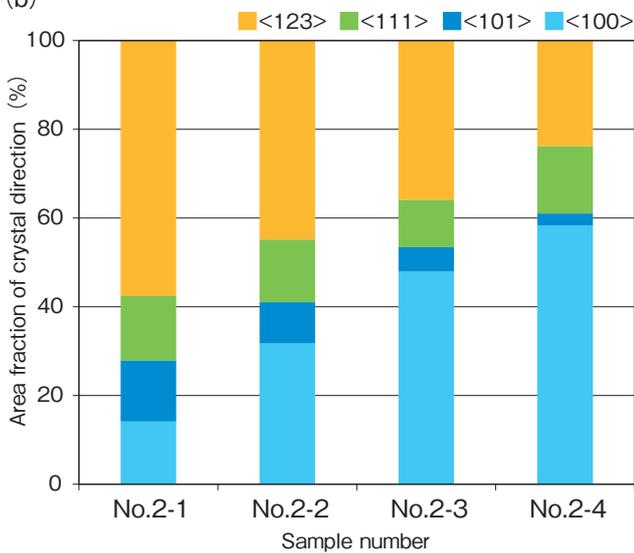


図6 (a) No.2のTD-ND面の平均結晶粒と、LD-TD, TD-ND各面のIPF図
(b) No.2のLD-TD面における結晶方向
(a) Average grain sizes on the TD-ND plane and the IPF map on the LD-TD plane and the TD-ND plane of sample No.2.
(b) Crystal directions on the LD-TD plane of sample No.2.

図7 No.2サンプルのIPC屈曲試験の平均寿命
Average flexing lives of sample No.2 after the IPC flexing tests (force-quit at 3.0×10^6 strokes).

3.3 考察

図8に、No.1-1, 1-2, 1-3における20万回屈曲後のサンプル表面のSEM写真を示す。表層の起伏成長が確認され、図2と関連付けるとその面積はW方位の配向が低いほど明らかに大きい。更に図9に結晶方位の影響を考察するため、W方位が配向したサンプル(20万回屈曲後)とNDW方位が配向したサンプル(破断した9万回屈曲後)の表面のSEM写真を示した。NDW方位を配向させると全面にマイクロオーダーの表面荒れが見られるが、W方位を配向させると表面荒れは軽微であることが分かった。

以上の結果から、屈曲中の塑性変形挙動に結晶方位が大きな影響を与えていることが考えられる。この表面荒れは、結晶のすべりによって形成されたすべり面の突き出し及び入り込みによるものと推測され、応力方向に対して活動できると考えられる主すべり方向の数やヤング率など、応力と結晶の方向の相対的な関係の違いが影響しているものと推測される。

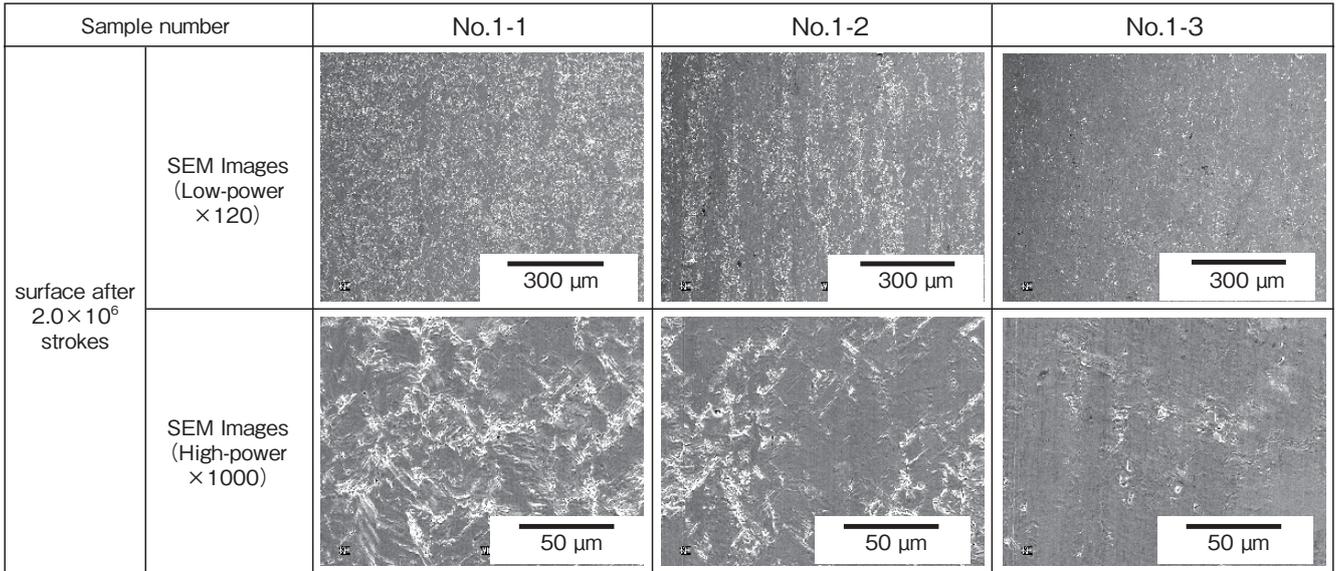


図8 No.1-1, 1-2, 1-3におけるIPC屈曲試験後のサンプル表面のSEM像
SEM images of the surface of samples No.1-1, No.1-2 and No.1-3 after the IPC flexing tests.

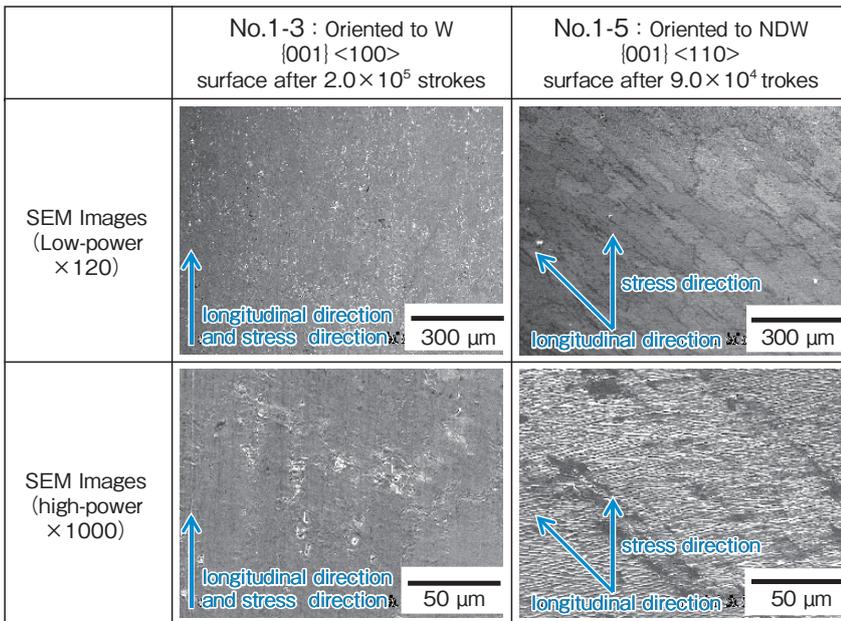


図9 No.1-3とNo.1-5におけるIPC屈曲試験後のサンプル表面のSEM像
SEM images of the surface of samples No.1-3 and No.1-5 after the IPC flexing tests.

図10にレーザー顕微鏡にて測定したサンプルの表面粗度を示す。W方位を配向させると比較的平坦な表面となるが、NDW方位を配向させると凹凸が顕著に形成されていることが分かる。更に、図11にNDW方位を配向させたサンプルの表

面外観を示す。表面に割れが観察されるが、この割れは凹凸の谷に沿っていることから、この谷の凹部で応力集中が高まり割れに至った可能性が考えられ、破壊過程の着眼点の一つと考えられる。

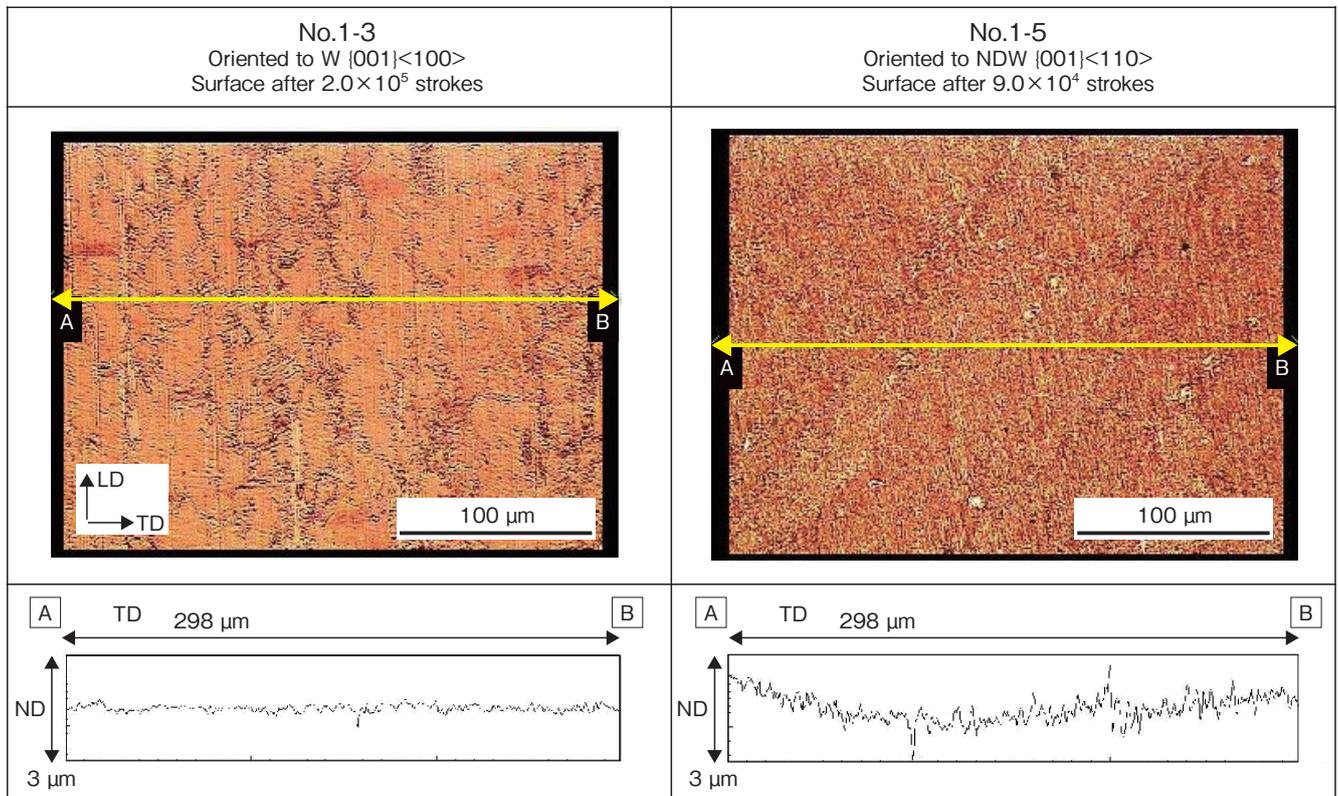


図10 No.1-3とNo.1-5におけるIPC屈曲試験後の表面外観
Roughness on the surfaces of samples No.1-3 and No.1-5 after the IPC flexing tests.

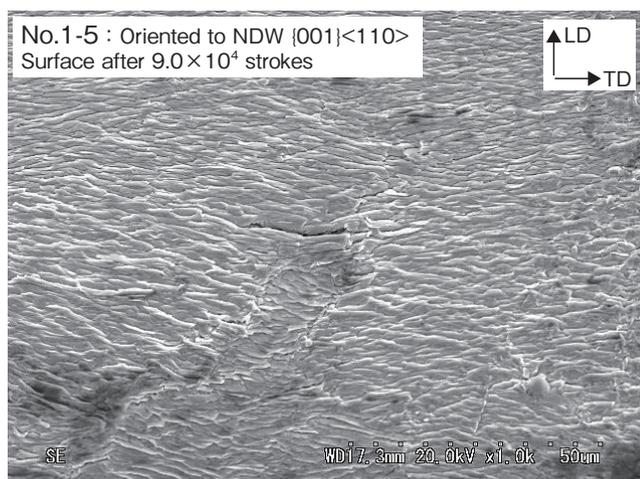


図11 No.1-5におけるIPC屈曲試験後の表層クラックのSEM写真
SEM image of a surface crack of sample No.1-5 after the IPC flexing tests.

sample Number	No.2-1	No.2-2	No.2-3	No.2-4
Average Grain Size/ μm	4	10	18	35
strokes	2.0×10^5	2.0×10^5	1.5×10^5	6.0×10^4
SEM Images (Low-power $\times 120$)				
SEM Images (High-power $\times 1000$ or $\times 3000$)				

図12 No.2サンプルにおけるIPC屈曲試験後の表面外観写真
SEM images of the surfaces of sample No.2 after the IPC flexing tests.

また図12には、結晶方位が比較的ランダムで結晶粒径が異なるNo.2の20万回屈曲後のサンプル、もしくはそれ以前に破断したサンプルの表面SEM像を示す。微細結晶粒を有するNo.2-1などでは、粒界を跨ぐ結晶すべりによる表面荒れの成長が抑止されまたその生成範囲も狭くなっており、このことがより寿命に優れる理由と考えられる。

今回の検討では、表層において結晶方位により表面状態が変化するとともに、その影響を受けたと考えられる亀裂が発生したが、下部組織の変化は不明であり更なる調査が必要である。

また今回、結晶方位並びに結晶粒径と屈曲寿命の関係で整理したが、結晶の配向度やそれに伴う粒界の性格の影響、或いは結晶粒の形状(アスペクト比など)の影響は考慮されていないため、今後の課題として取り組んでいく。

4. おわりに

タフピッチ銅の屈曲寿命に及ぼす結晶方位並びに結晶粒径の依存性を調査し、以下の結論を得た。

- (1) 屈曲寿命は $\{001\}\langle 100 \rangle$ 方位(W方位)に配向させたサンプルが、 $\{001\}\langle 100 \rangle$ 方位(W方位)以外の方位を配向させたものより優れており、必ずしも結晶粒の粗大化のみでは屈曲寿命は向上せず、特定方位の配向が強く寄与することが分かった。
- (2) 屈曲寿命は結晶粒をランダム配向させた場合、結晶粒径が微細であるほど優れる傾向があることが分かった。
- (3) 屈曲寿命が優れると試験後の表面の起伏成長が軽微であり、寿命に劣ると起伏成長が顕著であることが分かり、結晶方位の違いが各現象に影響を与えていることが示唆された。これは屈曲に伴う結晶すべりによる表面の突き出しと入り込みによるものであり、最終的にはクラックの起点になると考えられる。

今後詳細なメカニズム究明のため、粗化状態の下部組織の状態及び結晶の配向度や粒形状による対応粒界などの影響、或いは結晶粒の形状(アスペクト比など)の影響を調査していく。

参考文献

- 1) 山本佳紀, 阿部元, 酒井修二, 大谷憲夫: 伸銅技術研究会誌, 31 (1992), 65-71.
- 2) 冠和樹: 東京工業大学学位論文: 銅箔における繰返し変形挙動の厚さ依存性に及ぼす結晶方位の影響 (2015).
- 3) 室賀岳海, 横溝健治, 山本佳紀, 佐々木元, 佟慶平: 銅と銅合金, 47 (2008), 208-213.
- 4) 永井燈文, 波多野隆紹, 三宅淳司, 加藤正憲: 銅と銅合金, 41 (2002), 251-255.
- 5) 山岸浩一, 武田利器夫, 竹田真帆人: 銅と銅合金, 45 (2006), 27-30.