



# 金属細線における加工と熱処理に伴う 金属組織変化の解析

後藤和宏

住友電気工業株式会社 解析技術研究センター

キーワード：放射光，X 線回折，Williamson-Hall 法，銅

## 1. 測定実施日

|                  |       |         |
|------------------|-------|---------|
| 2019 年 6 月 25 日  | BL5S2 | (1 シフト) |
| 2019 年 8 月 21 日  | BL5S2 | (2 シフト) |
| 2019 年 11 月 13 日 | BL5S2 | (1 シフト) |
| 2019 年 11 月 27 日 | BL8S3 | (1 シフト) |
| 2019 年 11 月 27 日 | BL5S2 | (1 シフト) |

## 2. 概要

金属材料のうち純銅は高い導電率を持つため電線用材料として非常に多く使われており、一般的には引抜加工による塑性加工と熱処理を経て実用的な強度を付与される。加工と熱処理により材料内部で増減する歪は強度と相関があるため、歪の定量評価手法は工程設計上重要な技術である。そこで電線用の導体を想定した銅細線を対象として X 線回折測定とプロファイル解析により歪の変化を短時間で系統的に測定解析することを目的とした。また、純銅に添加元素を加え時効析出粒子により高強度化させた細線において析出物の分布を捉えるために小角 X 線散乱測定についても検討を行った。

## 3. 背景と研究目的

銅は電気特性と機械特性のバランスに最も優れる材料の一つであり、電線用の導体材料として工業的に極めて重要な材料である。その特性は塑性加工と熱処理などの工程を経て多様に変化するが、加工に伴って銅の内部における歪（不均一格子歪）が大きくなり、熱処理に伴って逆に歪が小さくなる等、強度と歪には相関があることが知られている。そのため、歪を定量評価できれば強度特性との相関を調べることが可能となり、加工条件や熱処理条件を最適化するうえでの有用な知見になると考えられる。この歪は X 線回折測定とプロファイル解析により数値化することが可能で<sup>[1,2]</sup>、Williamson-Hall 法と呼ばれ定式化されている<sup>[3]</sup>。銅に限らず面心立方格子の金属においてもこの手法が適用可能だが、弾性変形の異方性に対応して回折プロファイルが変化するため、平行な二つの結晶面からの回折プロファイルを用いて解析する方法がしばしば用いられる。本研究においても、銅細線を対象として Williamson-Hall 法で歪を算出し強度特性と比較することを目的とした。そこで高エネルギー X 線とデバイシェラー光学系を組み合わせる銅細線を測定できる BL5S2 を利用した。また、銅の強度向上に有効な時効析出粒子の観測可否を検討するために BL8S3 において小角 X 線散乱測定を実施した。

## 4. 実験内容

試料は銅の線材を用いた。BL5S2 のデバイシェラーカメラを利用して高効率なデータ収集を行うために、X 線の透過能を考慮して直径約 100  $\mu\text{m}$  の細線を伸線加工により準備した。強度特性は引張試験機を用いて調べた。加工後に熱処理を施すことで歪が低減し再結晶が進むことを捉えられるか検証するために、細線を熱処理したものも準備し、比較を行った。また、加工に伴い歪が増大し結晶粒が微細化されることを捉えられるか検証するために、熱処理後の細線を破断しない程度まで引張試験機で変形させたサンプルも準備した。伸線加工を経た銅の結晶は配向しやすいことが知られており、無配向の銅との

回折強度を比較するために銅粉末をガラスキャピラリに詰めた試料を準備した。

測定は BL5S2 を利用し、X 線エネルギーは 18 keV を狙いとして測定日毎に CeO<sub>2</sub> 粉末のデータを測定することでエネルギーを確認した。この X 線エネルギーの選択に際しては、銅に対する透過能、観測される回折ピークの幅、試料とカメラまでの空気中で減衰される程度などを考慮した。検出器には 4 連装の PILATUS 100K を用いカメラ長は 340 mm または 510 mm とし、サンプルホルダーはビームライン保有のキャピラリ用試料台を用いた。二次元データの一次元化は測定後ただちに測定制御 PC で実施し、一次元化データからプロファイル解析を行った。小角 X 線散乱測定には BL8S3 を利用し、X 線エネルギーは 13.5 keV、カメラ長は 4 m とした。小角 X 線散乱測定による直径約 20  $\mu\text{m}$  細線中の析出物評価を試みたが、後述する結果の通りサンプル形状起因の強度分布があり、定量的な比較ができなかった。

## 5. 結果および考察

銅細線を引張試験機により 0%（変形無し）から最大 25%まで引張変形させた試料について得られた X 線回折プロファイルを図 1 に示す。銅細線を変形させた量に応じて徐々にピーク高さが低くなり、幅は広がった。Cu 220 反射と同様に 440 反射についても回折プロファイルを得て、Williamson-Hall の式<sup>[3]</sup>に基づき不均一格子歪を算出した結果を表 1 に示す。変形量が増すごとに歪みが増大することを確認できている。小角散乱測定では、銅細線を鉛直向きに複数本並べて測定すると垂直方向にスパイク状の散乱強度分布が現れ、細線形状での測定では定量的な議論は困難であった。

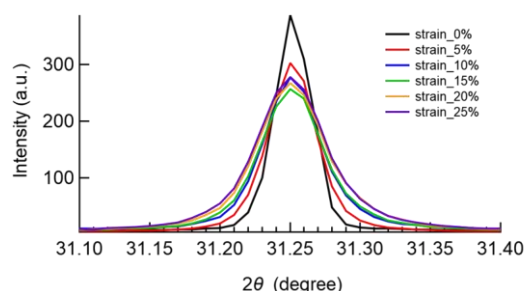


図 1. 引張変形に伴う Cu 220 反射の変化

表 1. 引張変形に伴う歪の変化

| 図1中の色 | 変形量 | 不均一格子歪  |
|-------|-----|---------|
| 黒     | 0%  | 0.008 % |
| 赤     | 5%  | 0.032 % |
| 青     | 10% | 0.058 % |
| 緑     | 15% | 0.074 % |
| 黄     | 20% | 0.084 % |
| 紫     | 25% | 0.097 % |

## 6. 今後の課題

今回は不均一格子歪を対象に X 線プロファイル解析を適用したが、弾性変形の異方性を考慮した解析、転位密度を求める解析、集合組織を考慮した解析、など複数手法の研究が進んでおり、それらを銅細線へ適用することで製造プロセスの詳細な理解につながると期待できるため、今後検討する。また、板や箔形状では電子顕微鏡と併用して X 線と中性子線を用いた小角散乱測定による析出物の解析事例があり、今回の結果を受けて今後は細線形状でも評価可能な手法の一つとして中性子小角散乱測定についても検討を進めていく予定である。

## 5. 参考文献

1. T. Ungár, J. Gubicza, G. Ribárik and A. Borbély: J. Appl. Cryst., 34 (2001), 298
2. T. Ungár and A. Borbély: Appl. Phys. Lett., 69(1996), 3173
3. G.K. Williamson and W.H. Hall: Acta Metall., 1(1953), 22