

# 銅極細線の繰返し加工硬化特性に及ぼす塑性拘束の効果

荒居 善雄

## 1. はじめに

銅線は、電化製品の配線や電話線、半導体の配線などに使用されており、その信頼性を保証するために銅細線の機械的性質を知ることが必要である。従来、銅単結晶および多結晶の繰返し加工硬化挙動に関して多くの研究が行われている<sup>(1)-(5)</sup>が、直径が1mm以下の引抜き加工を受けた銅細線の繰返し加工硬化挙動についての研究は行われていない。LSIやマイクロマシンに代表される構成材料の小型化は材料の寸法と材料組織寸法の比を1に近づけることになる。材料の繰返し荷重に対する応答は、疲労挙動の基本となるものである。図1に示すように、従来、単結晶銅については、試験片の方位が単一すべり方位の場合に、飽和塑性歪振幅によらず一定の飽和応力振幅を示すことが知られている<sup>(2)</sup>。多重すべり方位を有する銅の繰返し応力-歪関係は平坦部を示さず、PSBを形成せず、Labyrinth構造を形成することが報告されている<sup>(6)</sup>。多重すべりを起こす場合、転位の相互作用(Lommer-Cottrell固着)によって硬化すると考えられている。材料の寸法に対して材料組織寸法が十分に小さい場合に多くの研究が行われ、多重すべり方位を有する結晶粒の割合と繰返し加工硬化の関係が指摘されている<sup>(7)</sup>。単一すべりを生じるか、多重すべりを生じるかは、各すべり系に作用するせん断応力成分の大小関係で決まると考えられる。巨視的な応力に対するすべり面のすべり方向の応力成分の大きさはSchmidt因子で決まる。多結晶材料の場合、隣接する結晶粒の拘束によって局所的な応力が生じる。その応力は、無限体中に楕円体形状で存在する弾性係数の異なる材料の場合、その楕円体中で一様な場となる。形状が不連続な場合、不連続な位置近傍で局所的な応力を生じる。いずれにしても、力学的拘束により、多軸応力状態となり、多重すべりを生じやすくなることから、加工硬化が増大する。試験片直径が結晶粒径に近い場合、この隣接結晶粒による力学的拘束が小さくなると考えられる。すなわち、同一の結晶方位を有する場合、周囲の結晶の力学的拘束の大小によって結晶粒内に発生するせん断応力が変化し、繰返し加工硬化挙動が変化すると考えられる。隣接結晶粒と結晶方位がわずかに異なる場合、すべり変形が結晶粒界で食い違うことになる。この食い違い変位の解消のために結晶粒界に転位が発生し、それとともに弾性歪が生じる。この結果、転位密度は増加し、材料は加工効果することになる。

本研究では、試験片直径を変化させた完全焼なまし状態の純銅線における歪振幅一定下の繰返し加工硬化挙動を調べた。さらに、繰返し応力-歪曲線に及ぼす塑性拘束および試験片直径の影響を再現可能な転位動

力学に基づくシミュレーションモデルの構築を行った。

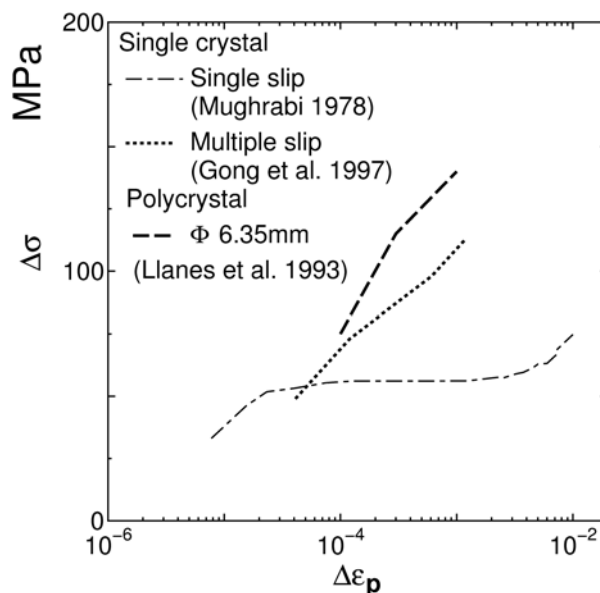


図1 単結晶と多結晶の繰返し応力-歪関係

## 2. 実験方法

供試材は、純度99.99%、直径1.5mmの銅細線であり、真空中、1073Kで8時間焼なましした。光学顕微鏡で観察した結果、試験領域に含まれる結晶粒の平均粒径は約490 $\mu$ mであった。繰返し加工硬化特性に及ぼす試験片直径の影響を調べるために、この銅線を42.5%のリン酸水溶液、電圧1.5Vで電解研磨して、ゲージ部直径約300 $\mu$ m、500 $\mu$ m、1.0mmとしたものを用いた。ゲージ部長さは、長柱の座屈に関するオイラーの公式を考慮して、ゲージ部直径の約6倍とした。

繰返し試験は、歪制御で、全て周波数0.01Hzの完全両振りで行った。以下に示す応力振幅および歪振幅はその最大値から最小値を引いた値である。全歪振幅一定条件下で飽和するまでの繰返し試験を、全歪振幅を段階的に増加させて行った。また、シミュレーションで用いる内部応力の値を、全歪一定条件下で30分間保持する応力緩和試験を行うことにより測定した。

直接測定される変位はアクチュエータの変位であり、治具およびつかみ部の変形が含まれている。そこで、他の条件は同一でゲージ長さをゼロとした試験を行い、荷重に対する変位を調べた。以下の全歪および塑性歪はアクチュエータの変位からこの治具およびつかみ部の変位を差し引いた値から算出した。

### 3. 実験結果

疲労試験の結果の一例として直径約  $300\mu\text{m}$ ,  $500\mu\text{m}$ ,  $1.0\text{mm}$  の試験片の各全歪振幅での飽和時の応力-全歪関係を図 2, 3, 4 に示す。引張側と圧縮側が対称な応力-歪ループとなっており、座屈せずに完全両振り試験が行われたことを示している。

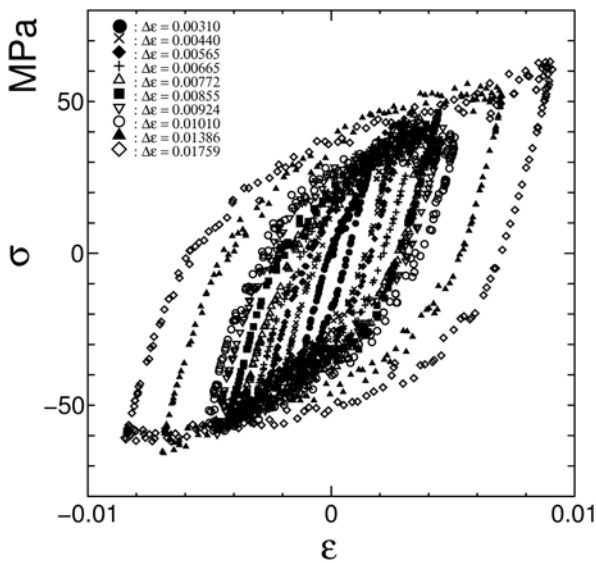


図 2 飽和時の応力と全歪の関係 ( $d=0.26\text{mm}$ )

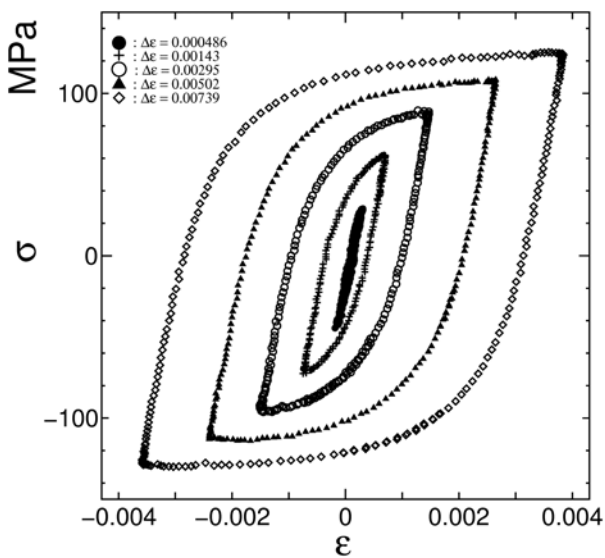


図 3 飽和時の応力と全歪の関係 ( $d=0.5\text{mm}$ )

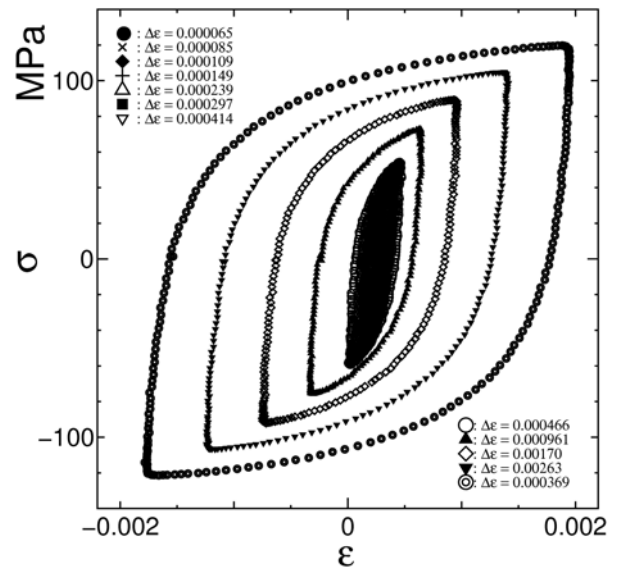


図 4 飽和時の応力と全歪の関係 ( $d=1.0\text{mm}$ )

各試験片の飽和時の塑性歪振幅と応力振幅の関係を図 5 に示す。試験片直径の減少に伴い、繰返し応力-塑性歪曲線は低応力側に位置し、塑性歪振幅の増加に伴う応力振幅の増加量も減少する。これらの変化は試験片直径が平均結晶粒径以下であるときに顕著である。表 1 より同一の塑性歪振幅の結果を比較すると試験片直径が太くなるほど、全歪振幅が減少し、応力振幅が増加する。繰返し加工硬化は、累積塑性歪の増加に伴う転位密度の増加によって生じると考えられる。転位が結晶粒界に遭遇し、隣接結晶粒でこの転位に近いすべり面の転位が作動する際に、結晶粒界には変形の不適合成分による転位が生成されると考えられる。このことから、転位が結晶粒界に遭遇せずに自由表面に出る場合の多い、試験片直径が平均結晶粒径以下である場合に加工硬化が小さいことが説明される。

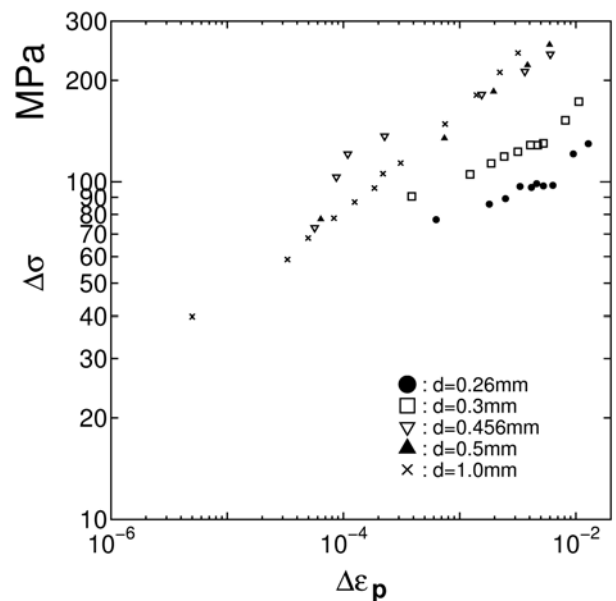


図 5 繰返し応力-歪関係に及ぼす試験片直径の影響

表 1 : 同一塑性歪振幅における応力振幅の試験片直径依存性

d(mm)	d/a	$\Delta \varepsilon$	$\Delta \varepsilon_p$	$\Delta \sigma$ (MPa)
1.0	2.04	0.00369	0.00318	241.33
0.5	1.03	0.00502	0.00384	222.11
0.456	0.93	0.00491	0.00364	212.64
0.3	0.61	0.00643	0.00317	122.91
0.26	0.53	0.00665	0.00331	96.89

#### 4. シミュレーション

シミュレーションモデルは、単結晶の塑性歪速度と転位速度の関係式に基づき<sup>(8)</sup>、繰返し変形による加工硬化を、転位密度と内部応力の変化の経験式として導入した、以下のような枠組の方法を用いた<sup>(1)(4)</sup>。

$$\dot{\varepsilon}_p = gbv^*(\rho_0 + M\varepsilon_p) \exp\left(-\frac{D + H\varepsilon_p^{1/n}}{\sigma - \sigma_i}\right) \quad (1)$$

ここで、 $\dot{\varepsilon}_p$  は塑性歪速度、 $g$  は転位の運動により生ずる歪を引張り軸方向の歪に換算するための定数、 $b$  はバーガースベクトル、 $v^*$  は応力が無限大のときの転位の移動速度、 $\rho_0$  は初期転位密度、 $M$  は変形の進行に伴う転位の増殖度を示す係数、 $\varepsilon_p$  は塑性歪、 $D$  は材料定数で、転位の運動に対する材料の抵抗、 $H$ 、 $n$  は材料定数、 $\sigma$  は応力、 $\sigma_i$  は内部応力を表す。内部応力については次のようにおいた<sup>(4)</sup>。

$$\sigma_i = A\{1 - \exp(-B\varepsilon_p)\} \quad (2)$$

$$A = A_1\eta^{A_2} \quad (3)$$

$$B = B_1\eta^{-B_2} \quad (4)$$

ただし、 $\eta = \rho_N/\rho_{ann}$ 。で、 $\rho_N$  および  $\rho_{ann}$  は、それぞれ第N回目半サイクル中の材料が有する総転位密度、および繰返し変形前の焼鈍材が有する総転位密度である。また、 $A_1$ 、 $A_2$ 、 $B_1$  および  $B_2$  は定数である。転位の増殖係数  $M$  は、繰返し変形過程初期においては大きく、変形が進むにつれて次第に減少し、繰返し硬化が飽和に至った段階でほぼ零になるように次式で表した<sup>(4)</sup>。

$$M = M_0 \exp(-m_0 \sum |\varepsilon_p|) \quad (5)$$

$$m_0 = C\Delta\varepsilon_p^{n_0-1} \quad (6)$$

ここで、 $M_0$  および  $C$  は定数で、 $n_0$  は単純引張応力-塑性歪曲線における加工硬化指数である。 $\sum |\varepsilon_p|$  は繰返し変形過程中、半サイクルごとに累積される塑性歪量である。

また、転位の運動に対する材料の抵抗を表す材料定数  $D$  については次のようにおいた<sup>(4)</sup>。

$$D = D_0\eta^{1/2} \quad (7)$$

繰返し応力-歪関係のシミュレーションは、実験で与えた sin 波を全歪として、式 (1) を Runge-Kutta 法により数値積分して塑性歪を求め、全歪から塑性歪を引いたものとヤング率  $E$  から応力を求めて計算していく。式 (1) を、半サイクルごとに初期条件を変更しつつ積分し、繰返し変形過程の進行に伴う応力-全歪関係の変化を算出した。シミュレーションに用いた銅固有の各定数を以下に示す。 $E = 137(GPa)$ 、 $g = 0.5$ 、 $b = 2.556(\text{\AA})$ 、 $V^* = 2270(m/s)$ 、 $n_0 = 0.323$ 、 $\rho_{ann} = 10^8(1/cm^2)$ 、 $M_0 = 5 \times 10^{10}(1/cm^2)^{(9)}$ 。

式 (7) の  $D_0$  は転位の移動に対する材料の抵抗を表す定数である。試験片直径の減少に伴い、すべり面が結晶粒界を横切る回数が減少し、転位の移動が容易になる。このことから、試験片直径の異なる実験結果を再現する  $D_0$  をシミュレーションの試行錯誤により決定した。直径約 300 $\mu\text{m}$ 、500 $\mu\text{m}$ 、1.0mm の試験片を全歪振幅 0.0066、0.0050、0.0037 でそれぞれ飽和まで繰返し試験を行った場合の応力-歪関係のシミュレーション結果と実験結果を図 6 に、また、シミュレーションに用いた  $D_0$  を表 2 に示す。この時、 $A_1 = 30$ 、 $A_2 = 0.38$ 、 $B_1 = 3000$ 、 $B_2 = 0.7$ 、 $C = 1.0$ 、 $H = 1000\text{MPa}$ 、 $n = 3$  である。試験片直径の減少による加工硬化量の減少を精度良く再現できており、試験片直径が繰返し加工効果特性に及ぼす影響を  $D_0$  の変化によって再現可能である。

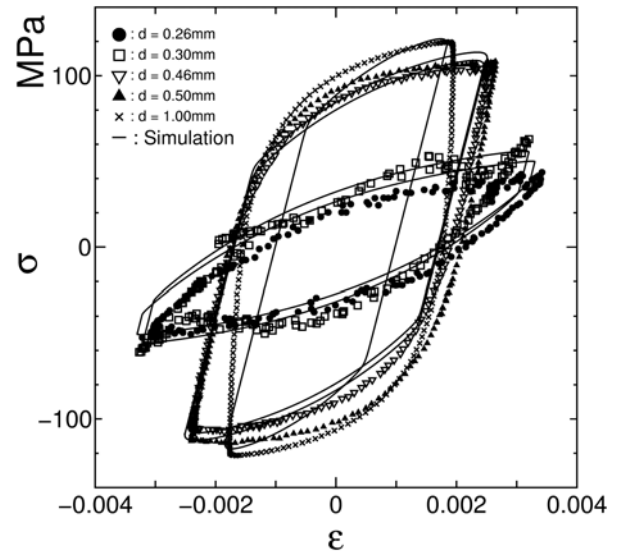


図 6 応力-歪ループのシミュレーション結果と実験結果の比較

Table 2 :  $D_0$  の推定結果

d[mm]	1.0	0.5	0.456	0.3	0.26
$D_0(\text{MPa})$	2200	1800	1700	200	50

#### 5. 結言

本研究では、試験片直径を変化させた完全焼なまし状態の純銅線における歪振幅一定下の繰返し加工硬化挙動を調べた。さらに、繰返し応力-歪曲線に及ぼす

塑性拘束および試験片直径の影響を再現可能な転位動力学に基づくシミュレーションモデルの構築を行った。

(1) 試験片直径の減少に伴い、繰返し応力-塑性歪曲線は低応力側に位置し、塑性歪振幅の増加に伴う応力振幅の増加量も減少する。これらの変化は試験片直径が平均結晶粒径以下であるときに顕著である。同一の塑性歪振幅の結果を比較すると試験片直径が太くなるほど、全歪振幅が減少し、応力振幅が増加する。

(2) 試験片直径が平均結晶粒径以下である場合、転位が結晶粒界に遭遇せずに自由表面に出る場合が多く、加工硬化が小さいと考えられる。開発したシミュレーション方法により、試験片直径の減少による加工硬化量の減少を精度良く再現でき、試験片直径が繰返し加工効果特性に及ぼす影響をパラメータの変化によって再現可能である。

## 謝 辞

本研究は、天田金属加工機械技術振興財団の研究助成(平成14年度研究助成金 AF-2002020)を受けて行われた。ここに謝意を表す。

## 文 献

- (1) 山田敏郎、幡中憲治、与川慎太郎、「銅の疲れ強さに対する波形および速度効果に関する結晶塑性的研究」, 日本機械学会論文集, 40巻, 339号, 2967-2978(昭49).
- (2) Mughrabi, H., "The cyclic hardening and saturation behaviour of copper single crystals," *Mater. Sci. Engng.*, Vol. 33, pp. 207 - 223, 1978.
- (3) Lukáš and Kunz, "Is there a plateau in the cyclic stress-strain curves of polycrystalline copper?," *Materials Science and Engineering*, Vol. 74, pp. L1 - L5, (1985)
- (4) 幡中憲治、藤満達朗、澄川泰弘、「銅の繰返し硬化挙動の結晶塑性的数値シミュレーション」, 日本機械学会論文集, 55巻, 512号, 1000-1009(1989).
- (5) Suresh, S., "Fatigue of Materials - Second Edition", Cambridge University Press, 1998.
- (6) Gong, B., Wang, Z. and Wang, Z., "Cyclic deformation behavior and dislocation structures of [001] copper single crystals - I cyclic stress-strain response and surface feature," *Acta mater.*, Vol. 45, No. 4, pp. 1365 - 1377, 1997.
- (7) Llanes, L., Rolletti, A. D., Laird, C. and Bassani, J. L., "Effect of grain size and annealing texture on the cyclic response and the substructure evolution of polycrystalline copper," *Acta metall. mater.*, Vol. 41, No. 9, pp. 2667 - 2679, 1993.
- (8) Johnston, W. G. and Gilman, J. J., "Dislocation Velocities, Dislocation Densities, and Plastic Flow in Lithium Fluoride Crystals," *J. Appl. Phys.*, Vol. 30, pp. 129 - 144, (1959).
- (9) Livingston, J. D., "The Density and Distribution of Dislocations in Deformed Copper Crystals," *Acta metall.*, Vol. 10, Mar., pp. 229 - 239, 1962.
- (10) Pedersen, O. B., *Deformation of Polycrystals* (edited by N. Hansen, A. Horsewell, T. Leffers and

H. Lilholt), pp. 451 - 457, Risø National Laboratory, Roskilde, Denmark, 1981.

(11) Mughrabi, H. and Wang, R., "Cyclic deformation of face-centered cubic polycrystals: a comparison with observations on single crystals," In "Deformation of polycrystals: Mechanisms and microstructures (eds: N. Hansen, A. Horsewell, T. Leffers and H. Lilholt) Proc. second Risø Int. Symp., Roskilde, Denmark, Risø National Laboratory, pp. 87 - 98, 1981.

(12) Gibbs, G. B., "Creep and stress relaxation studies with polycrystalline magnesium," *Phil. Mag.*, Vol. 13, pp. 317 - , 1966.

(13) Solomon, A. A., Ahlquist, C. N. and Nix, W. D., "The effect of recovery on the measurement of mean internal stresses," *Scripta metall.*, Vol. 4, pp. 231 - 234, 1970.

(14) Feltham, P., "Stress relaxation in copper and alpha-brasses at low temperatures," *J. Institute of Metals*, Vol. 89, pp. 210 - 214, 1960-61.

(15) Li, J. C., "Dislocation dynamics in deformation and recovery," *Canadian J. of Phys.*, Vol. 45, pp. 493 - 509, 1967.

(16) Gupta, I and Li, J. C. M., "Stress relaxation, internal stress, and work hardening in some bcc metals and alloys," *Metall. Trans.*, Vol. 1, August, pp. 2323 - 2330, 1970.

(17) Orowan, E., "Problems of Plastic Gliding," *The Proc. Phys. Soc.*, Vol. 52, Part I, pp. 8 - 22, 1940.

(18) Gillis, P. P. and Gilman, J. J., "Dynamical Dislocation Theory of Crystal Plasticity. I. The Yield Stress," *J. Appl. Phys.*, Vol. 36, No. 11, pp. 3370 - 3380, 1965.

(19) Gilman, J. J., "Microdynamics of Plastic Flow at Constant Stress," *J. Appl. Phys.*, Vol. 36, No. 9, pp. 2772 - 2777, 1965.

(20) Morrow, J., "Cyclic plastic strain energy and fatigue of metals," *ASTM STP*, Vol. 378, pp. 45 - 87, 1965.

(21) Kuhlmann-Wilsdorf, D., "Unified theory of stages II and III of work-hardening in pure fcc metal crystals," *Work Hardening*, ed. J. P. Hirth, Vol. 46, pp. 97 - 139, 1966.

(22) Kuhlmann-Wilsdorf, D. and Laird, C., "Dislocation behavior in fatigue V: Breakdown of loop patches and formation of persistent slip bands and of dislocation cells," *Mater. Sci. Engng.*, Vol. 46, pp. 209 - 219, 1980.

(23) Gilman, J. J., "Microdynamical theory of Plasticity," *Microplasticity*, ed. C. J. McMahon, pp. 17 - 43, 1968.

(24) Bhat, S. P. and Laird, C., "The cyclic stress-strain curves in monocrystalline and polycrystalline metals," *Scripta metall.*, Vol. 12, pp. 687 - 692, 1978.