

大ひずみを受けた引抜純銅の流動応力と連続動的再結晶挙動および内部変数モデル

Flow Stress, Continuous Dynamic Recrystallization Behavior, and Internal State Variable Model of Severely Deformed Drawn Pure Copper

高村 瞭太
Ryota TAKAMURA

新井 龍一
Ryuichi ARAI

上島 伸文*
Nobufumi UESHIMA

及川 勝成*
Katsunari OIKAWA

電線に利用される純銅線は冷間引抜などの大ひずみ加工により製造されるが、現時点では大ひずみ領域での純銅のミクロ組織や流動応力を予測するモデルは十分に提案されていない。本研究では、引抜加工により純銅に大ひずみを導入し、その過程での純銅のミクロ組織や機械的特性の変化を明らかにした。更に、その予測モデルとして内部変数を用いた連続動的再結晶モデルを検討した。これにより、加工条件下での純銅の特性の予測精度が向上する可能性がある。

Pure copper wires used in electrical cables are manufactured through severe deformation processes such as cold drawing. However, models that predict the microstructure and flow stress of pure copper in the severe deformation region have not been sufficiently proposed. In this study, severe deformation was introduced into pure copper through drawing processes, and changes in the microstructure and mechanical properties during this process were investigated. Furthermore, an internal state variable model for continuous dynamic recrystallization during drawing of copper was established. This model would be applied for the optimization of the production process of pure copper wires.

1. はじめに

近年、電気自動車の普及により、エンジンの代替として用いられるモータに使用される4N純度の純銅線の需要が高まっている。純銅線の製造プロセスの効率化には、引抜加工で導入される大ひずみ領域の組織や流動応力の予測モデルが必要である。これまでに、アルミニウム⁽¹⁾やチタン⁽²⁾で提案されているものの、銅では十分に提案されていない⁽³⁾。本研究では、引抜加工により純銅に大ひずみを導入し、その過程での純銅のミクロ組織や機械的特性の変化を明らかにした。更に、その予測モデルとして内部変数を用いた連続動的再結晶(cDRX: Continuous Dynamic Recrystallization)モデルを検討した。

2. 実験方法

2.1 純銅の引抜加工

母材には相当径 ϕ 7.76 mmの無酸素銅 MiDIP[®] 荒引線を用いた。

表1 MiDIP[®] 荒引線の組成

元素	Cu	O	不純物
含有量[wt. %]	99.996	≤0.001	≤0.004

* 東北大学

使用した。MiDIP[®] 荒引線の組成を表1に示す。

引抜加工は室温にて液体潤滑下で行い、ダイス全角16°のダイスを用いて最終線径 ϕ 0.137 mm(対数加工度 $\epsilon=8.1$)まで加工した。潤滑には湿式伸線用潤滑剤(メタルシンN610, 共栄社化学製)の10%水溶液を使用した。1パスあたりの減面率は可能な限り均一となるようにダイスを選定し、平均減面率は16.7%であった。引抜方向は全て同一である。

2.2 引張試験

引張試験はビデオ式非接触伸び幅計(TRView 120S/500S, 島津製作所製)が接続されたオートグラフ(AG-20kND, 島津製作所製)を用いて実施した。引張試験用の試料は引抜材から長さ300 mmで切り出した。引張試験条件はJIS Z2241:2022を参考につかみ具間距離250 mm, 標線間距離200 mm, ひずみ速度 $1.3 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ で実施した。純銅は明確な降伏点を示さないため、0.2%オフセット法により求めた0.2%耐力を流動応力とした。

2.3 ミクロ組織観察

引抜材のミクロ組織観察は電界放出型走査電子顕微鏡(FE-SEM, JSM-IT800, JEOL製)および電子線後方散乱回折装置(EBSD, DigiView5, EDAX製)を用いて行った。

観察面は引抜方向に垂直な横断面とし、横断面の中央、0.5 R および円周部の3箇所で測定を行った。EBSD 測定のスレップサイズは測定視野に応じて $1 \mu\text{m}$ から $0.03 \mu\text{m}$ の範囲で調整した。

マイクロ組織観察用の試料は、線径 1mm 以上の試料については 50°C で硬化する2液性エポキシ樹脂に包埋した。包埋した試料を SiC 研磨紙による機械研磨、ダイヤモンド懸濁液によるバフ研磨、さらにアルミナ砥粒およびコロイダルシリカによる振動研磨を施し、仕上げに平面イオンミリングを行った。一方、線径 1mm 未満の試料については、断面作製のためのイオンミリングを行い、観察面を整えた。

3. 実験結果

3.1 引張試験結果

図1に、引張試験により得られた各加工度における流動応力、引張強度、ならびに破断伸びを示す。なお、加工度には対数加工度を用いている。破断伸びは加工度3を超えると2%以下で推移しており、飽和していると思われる。一方、加工度8.07までの範囲においては流動応力、引張強度共に単調増加した。

同様に室温での引抜加工を行った場合においても、酸素濃度が $200 \sim 400 \text{ppm}$ と高く、組織内に亜酸化銅粒子が含まれる純銅においては加工度1.91以降においては降伏応力が低下すると報告されている⁽⁴⁾。酸素濃度の高い純銅は組織内に硬質な亜酸化銅が分散していることにより、本来の降伏応力に達する前に破断している可能性がある。よって、不純物の少ない純銅では加工限界に到達するまでは流動応力と引張強度は単調増加すると推察される。

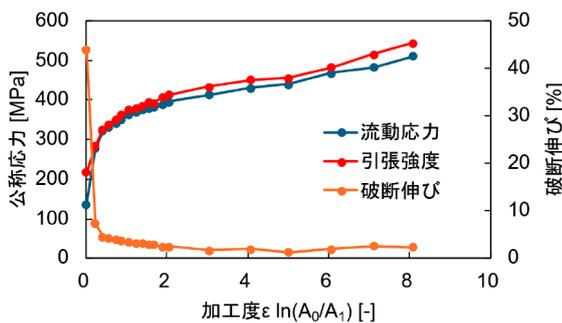


図1 純銅線の加工度に対する機械的特性の変化

3.2 ミクロ組織観察結果

図2に、EBSD 測定結果より算出した各加工度における双晶を除いた平均結晶粒径を示す。母材 ($\epsilon = 0$) では平均結晶粒径 $79 \mu\text{m}$ であったが加工度8.1では $0.67 \mu\text{m}$ まで微細化した。また、同一加工度でも線材中央から円周に向かって粒径が小さくなる傾向が確認された。これはダイス引抜時にダイスと接触する外周の方が内側より大きい塑性ひずみが導入されるためだと考えられる。

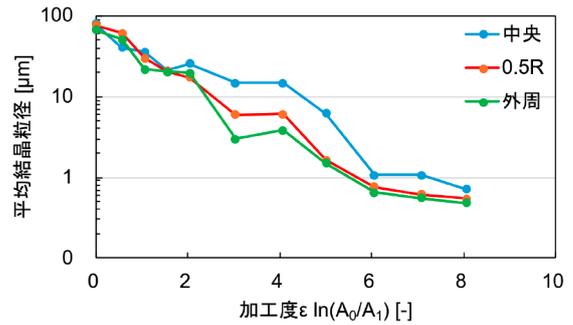


図2 純銅線の加工度に対する結晶粒径の変化

図3に、各加工度における引抜方向を面法線とした逆極点図 (IPF) マップを示す。母材では粗大な結晶粒や焼鈍双晶組織が確認され、結晶配向もランダムである。一方、加工度の増加に伴い結晶粒径が微細化し、引抜方向に対して $[001]$ 軸および $[111]$ 軸が優先的に配向した集合組織が形成された。

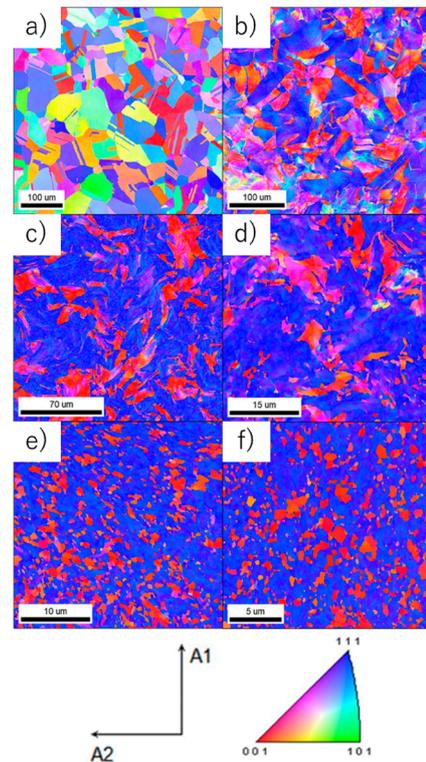


図3 引抜方向から見た純銅線の IPF マップ (a) $\epsilon = 0$ (b) $\epsilon = 0.6$ (c) $\epsilon = 2.0$ (d) $\epsilon = 4.1$ (e) $\epsilon = 6.1$ (f) $\epsilon = 8.1$.

図4に、同じ試料の IQ マップ上に低角粒界 (LAGBs: Low Angle Grain Boundaries) と高角粒界 (HAGBs: High Angle Grain Boundaries) を描画した。ここでLAGBsは 2° から 15° の方位差を持つ粒界で、HAGBsは 15° 以上の方位差を持つ粒界とした。母材では転位も少なく、結晶粒内にLAGBsは少ない。加工度2.0では、ひずみにより導入された転位により、結晶粒内でLAGBsが発達している。加工度4.1ではHAGBsが増加し始め、8.1ではHAGBsが高密度に生成していることが確認できる。

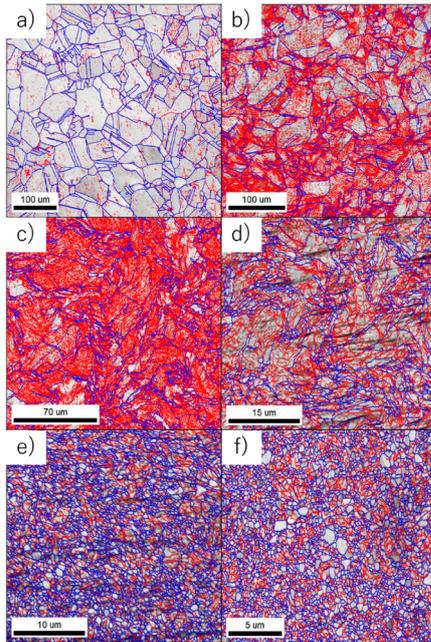


図4 純銅線のLAGBs(赤線)とHAGBs(青線)マップ
(a) $\varepsilon = 0$ (b) $\varepsilon = 0.6$ (c) $\varepsilon = 2.0$ (d) $\varepsilon = 4.1$ (e) $\varepsilon = 6.1$ (f) $\varepsilon = 8.1$ 。

図5に、同じ試料の粒界方位差分布を示す。方位差は 2° から 65° の範囲において20分割で評価しているため、1クラスの範囲は 3.15° である。母材においては焼鈍双晶の割合が多く、 60° の方位差が高いため相対的に低角側の方位差の割合は低い。母材に対し引抜加工を加えると、まず低角の方位差割合が急増し、更に加工度が增加すると低角の方位差が高角側へシフトしている。

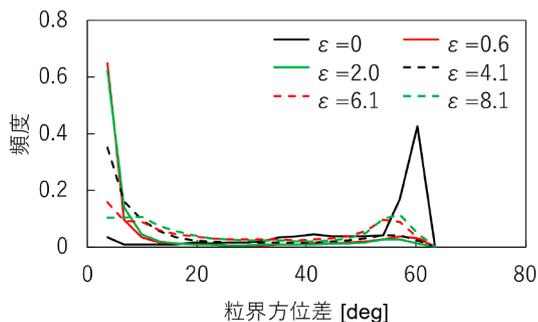


図5 各加工度における方位差分布

図6に、各加工度の横断面中央におけるLAGBsとHAGBsの割合を示す。母材ではHAGBsの割合が60%を占めているが、引抜加工を行うと即座にLAGBsの割合が90%を占める。加工度2.0まではLAGBsとHAGBsの割合は変わらないが、加工度3.0を超えると徐々にHAGBsの割合が増加している。

加工度の進展に伴うLAGBsの形成、LAGBsの方位角の増加とHAGBsへの転換、微細な結晶粒の生成は連続動的再結晶が生じていることを示している⁽⁵⁾。

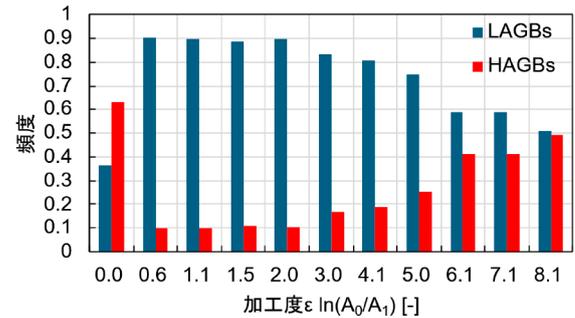


図6 各加工度におけるLAGBsとHAGBsの割合

4. 予測モデル検討

4.1 計算方法

チタンで提案されているモデル⁽²⁾を元に簡略化などを行い、計算に用いた。本研究の計算モデルは上島らによって提案されたモデルを使用している。数式などの詳細は、上島らを参照されたい⁽⁶⁾。

計算モデルの概略について記すと、転位密度を内部変数としたcDRXのモデルである。計算の流れとしては、まず与えられたひずみ速度に対する可動転位密度および不動転位密度の時間変化を計算する。この際、フランク-リード源による転位の増殖や、可動転位の不動化、可動転位の対消滅などが考慮されている。この計算時に得られる消滅した転位の一部がcDRXに利用されるとして、LAGBsの生成や方位回転に用いられる。

これらの計算を母材の方位差分布や結晶粒径を初期条件として行うことで、各加工度における方位差分布や結晶粒径を計算でき、ベイリー-ハーシュの式より流動応力も計算できる。なお、計算に用いる式にはフィッティングにより同定する必要があるパラメータが複数あり、実験値をよくあらわすようにフィッティングを行う。

4.2 計算結果と実験結果の比較

粒界方位差の計算結果と実験結果の比較を図7に示す。赤線が実験結果、青線が計算結果である。(a)は母材の分布であり、焼鈍双晶に対応した 60° 部分の頻度が高い実験値を初期条件として入力している。(b)は加工度0.6における分布であり、低角側、高角側ともに実験値から計算値がずれているが、この部分を合わせるようなパラメータとした場合には、流動応力や結晶粒径が大きすぎてしまう為、今回のパラメータを採用した。加工度2.0, 4.1では高角側のピークがおおよそ一致している。加工度6.1, 8.1では低角側は実験と計算がおおよそ一致しているが、高角側のピークが実験値はブロードになっている。これはLAGBsだけでなくHAGBsも回転しているとする説明が付くと思われるが、今回のモデルではHAGBsの回転は考慮していない。低角側の回転だけでなく、高角側の回転も考えるモデルが必要と考えられる。

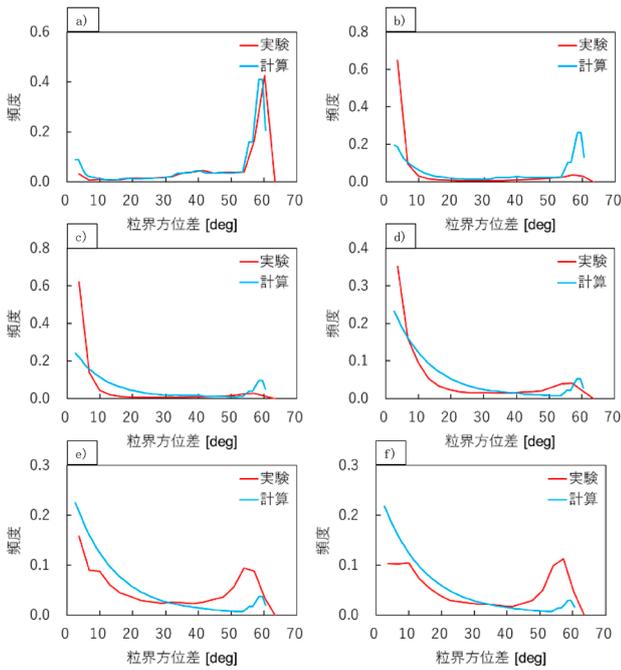


図7 粒界方位差の計算結果と実験結果の比較

(a) $\epsilon = 0$ (b) $\epsilon = 0.6$ (c) $\epsilon = 2.0$ (d) $\epsilon = 4.1$ (e) $\epsilon = 6.1$ (f) $\epsilon = 8.1$.

図8に流動応力と加工度の関係を示す。初期の急上昇を除いて、実験と計算がよく一致している。初期のLAGBsの急上昇を再現しつつ、高加工度側で低角側と高角側の頻度も再現できるようなモデルを作成できれば、全ての加工度域での流動応力を再現できると考えられる。

図9に結晶粒径と加工度の関係を示す。加工度全域にわたって計算結果が実験よりも10 μm 程度大きくなっているが、変化傾向を再現できている。結晶粒径をより小さくするためにはLAGBsの回転量を大きくする必要があるが、その場合は粒界方位差分布の低角側がよりブロードとなる。既に実験よりも少しブロード側となる計算パラメータを用いており、このモデルではこれ以上合わせることは難しい。連続動的再結晶により生じる結晶粒界の方位差分布のモデルとして、指数分布モデルを使っていることが原因の一つとして考えられる。指数分布モデルではなく、連続動的再結晶に使われた転位密度に応じて各クラスの方位を回転させるモデルを現在検討中である。

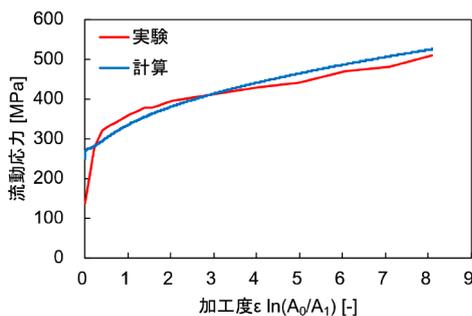


図8 流動応力と加工度の関係

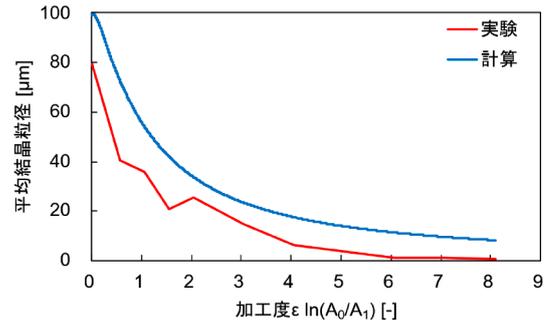


図9 結晶粒径と加工度の関係

5. 結 言

本研究では、MiDIP®を供試材とし、丸ダイスを用いた冷間引抜加工によって加工度8.1までの大ひずみを導入した引抜純銅を作製した。作製した試料に対し、機械特性評価およびマイクロ組織観察を行い、大ひずみを受けた引抜純銅の流動応力と連続動的再結晶の内部変数モデルについて検討した結果、以下の結論を得た。

1. 酸素濃度が10 ppm以下の無酸素銅は、組織内に亜酸化銅粒子が分散している酸素濃度200～400 ppmの純銅と異なり、加工度8.1という大ひずみ領域においても引張強度や流動応力が低下しない。
2. 引抜加工により結晶粒内に転位が蓄積されLAGBsが増加し、加工度が3.0を超えるとLAGBsがHAGBsに転換され、微細な新しい結晶粒が形成される連続動的再結晶が進行する。
3. 連続動的再結晶モデルを用いた内部変数モデルによって、引抜純銅の結晶方位差分布、流動応力、結晶粒径の変化をある程度再現可能であった。
4. 一部実験と計算が一致しない部分があったが、これは生成されるLAGBsのモデルとして指数分布を用いていることや、高角側の回転を考慮していないことが原因と考えられる。指数分布を用いずに、各クラスの方位の回転を考慮するモデルを引続き検討している。

参考文献

- 1) Sun, Z.C., et al.: "Modeling of continuous dynamic recrystallization of Al-Zn-Cu-Mg alloy during hot deformation based on the internal-state-variable (ISV) method", Int. J. Plast., vol. 106, p.73-87, Elsevier Ltd., (2018)
- 2) Ferraz, F., et al.: "A predictive mesoscale model for continuous dynamic recrystallization", Int. J. Plast., vol.179, article 104022, Elsevier Ltd., (2024)
- 3) Zhu, S., et al.: "Discrete modelling of continuous dynamic recrystallization by modified Metropolis algorithm", Comp. Mater. Sci., vol. 234, article 112804, Elsevier Ltd., (2024)

- 4) Yang F., et al.: "Effect of cold drawing strain on the microstructure, mechanical properties and electrical conductivity of low-oxygen copper wires", Mater. Sci. Eng. A, vol. 818, article 141348, Elsevier Ltd., (2021)
- 5) 酒井 他: 「動的再結晶 - 連続反応と不連続反応」, まてりあ, 第48巻, 第10号, p.491-498, (2009)
- 6) 上島 他: 「大ひずみを受けた引抜純銅の流動応力と連続動的再結晶の内部変数モデル」, 第76回塑加連講論, p.131-132, (2025)

SWCC (株)

高村 瞭太 (たかむら りょうた)
新領域開発センター 基盤技術開発 G
シミュレーション業務に従事

SWCC (株)

新井 龍一 (あらい りゅういち)
モビリティ開発センター 開発 2G
モビリティ関連商品開発に従事

東北大学

上島 伸文 (うえしま のぶふみ)
素形材プロセス学分野 助教

東北大学

及川 勝成 (おいかわ かつなり)
素形材プロセス学分野 教授