

金沢大学 正○北 和久

金沢大学 正 門前 亮一

金沢大学 正 北川 和夫

(株)神戸製鋼所 小林 一徳

1. 目的

Feを2%程度含有するCu-Fe系合金はICリードフレームとして実用化されている。リードフレームは集積回路のなかで導電材料であると同時に構造材料としての役割も果たしている。そのため、この製品の高集積化により、銅が有する良好な電気伝導性をできるだけ低下させることなく、耐軟化特性を向上させることが重要な課題となっている。

Cu-Fe系合金の耐熱性についての研究は数多く報告されており、時効により微細なFe粒子が析出し、これが耐軟化特性を高めることが明らかとなっている。しかし、実用材を使った耐熱性の研究はほとんど行われていない。そこで本研究ではCu-Fe系合金(CDA194)を用いて分散粒子の分布形態が異なる実用材を作製し、製造工程で生成する分散粒子の種類と形態を明確にした。さらに、この実用材を用い、再結晶挙動に及ぼす分散粒子の影響についても調査した。

2. 実験方法

Cu-2.15wt%Fe-0.03wt%P合金の鑄塊を1243Kで均質化処理した後、熱間圧延を行い、異なる条件にて冷却した。続いて圧延率89%の冷間圧延を行い、848K×1hの時効処理を施した。さらに冷間圧延を行い、板厚が0.125mmの試料を作製した。この各工程(熱延材、時効材、最終材)の試料についてTEM観察し、分散粒子の種類と分布形態を調べた。また、この分散粒子の分布形態が異なる2種類の最終材(試料1,2)について再結晶軟化曲線および等温再結晶曲線を求めた。さらに、熱間圧延後の冷却条件を試料1と等しくし、異なる時効温度にて作製した最終材について再結晶軟化曲線を求めた。

3. 結果

TEM観察より、熱延材では2つのサイズ分布が確認され、準安定な球状 γ -Fe粒子が析出していた。大きいサイズ(I)の粒子の平均直径は試料1が68nm、試料2が76nmであり、小さいサイズ(II)のそれは16nm、17nmであった。この γ -Fe粒子Iは熱間圧延中に形成されたものであり、 γ -Fe粒子IIはその後の冷却により析出したものである。続く冷間圧延により、 γ -Fe粒子は α -Fe粒子へとマルテンサイト変態し、粒子は層状の内部双晶構造を持っていた。また、 α -Fe粒子の周辺には多くの転位が導入

された。その後、熱処理によりそれらの転位は消滅し、時効により新たにCu母相と整合である微細(III)な γ -Fe粒子(平均直径9.5nm)が析出した。なお、熱延材で観察された粒子のサイズは時効後も実質的に変化しなかった。さらに冷間圧延され、全ての粒子がマルテンサイト変態した。図1は最終材(試料1)の再結晶後のTEM像である。各種サイズ(I,II,III)の α -Fe粒子が比較的ランダムに分布しているのが見られる。また、全ての最終材で製造時に晶出した粗大な粒子も観察された。電子線回折の解析により、この粒子はbcc構造を持つ安定 δ -Fe₃P化合物であることが分かった。

図2は分散粒子の分布形態が異なる2種類の最終材の再結晶軟化曲線である。試料1は試料2と比較して軟化し難い。また、TEMと光学顕微鏡観察により求めた等温再結晶曲線から、再結晶粒の核生成とその後の成長は試料2の方が速いことが分かった。

図3は最終材(試料1)を773K、30secで焼鈍したときのFe₃P化合物のTEM像である。Fe₃P化合物の周辺で、転位密度が非常に低い再結晶粒の核形成が認められる。このような組織は試料全体に渡って多数観察された。2 μ m以下の再結晶粒の数に対する再結晶粒の核形成位置となっていたFe₃P化合物の数を測定した結果、試料1が58/124であり、試料2が51/99であった。これより、両試料とも粗大なFe₃P化合物が主要な再結晶核の形成位置となっていることが分かった。両試料中のFe₃P化合物の密度はほぼ同じで大きさが異なっており、試料1の平均粒子直径は1.0 μ m、試料2のそれは1.2 μ mであった。さらに、再結晶核が形成していたFe₃P化合物のサイズは形成していなかったそれより大きかった。このことから試料2は試料1と比べ、再結晶粒の核が容易に生成したものと理解される。

図4は最終材(試料1)を773K、1minで焼鈍したTEM像である。上側が再結晶領域であり、下側が未再結晶領域である。このように、再結晶の初期段階において再結晶の粒界が α -Fe粒子Iによってピン止めされているのが試料全体に渡って最も多く観察された。そこで次式に示すZener dragの式を用いて、最終材の各分散粒子における粒界移動の拘束力を比較した。

$$F = K (f \sigma \lambda r)$$

ここで、Fは粒子による粒界移動の拘束力である。

また、 r と f はそれぞれ粒子の平均半径と体積率であり、 σ は粒界エネルギーである。 K はモデルに依存する定数であり、粒子が不規則に分布している場合には1程度である。いずれの試料とも α -Fe粒子Iによる粒界移動の拘束力が最も大きくなった。また α -Fe粒子によるそれは試料2より試料1の方が大きい値となった。前者の結果は、 α -Fe粒子Iが粒界移動を抑制するという上記TEM観察と一致している。また後者は、試料1の方が再結晶粒の成長が遅いという結果を説明する。

図5は熱間圧延後の冷却条件を試料1と等しくし、異なる時効温度にて作製した最終材の再結晶軟化曲線である。時効温度が高いほど軟化特性は低下している。これらの試料の最終材において測定したFe₃P化合物のサイズと面密度、および時効材において求めた α -Fe粒子Iと α -Fe粒子IIのサイズには差が認められなかった。しかし、 γ -Fe粒子IIIのサイズは異なっていた。したがって、図5の軟化特性の違いは、 α -Fe粒子IIIの分布形態の相違が原因の1つである。

4. 結言

(1) CDA194合金の熱間圧延およびその後の冷却において、粒子径の異なる球状 γ -Fe粒子が析出する。続く冷間圧延により、これらのFe粒子は $\gamma \rightarrow \alpha$ マルテンサイト変態する。さらに時効すると新たに微細な γ -Fe粒子が析出する。その後冷間圧延され、全ての粒子が α -Fe粒子となる。実用材ではこの α -Fe粒子と粗大なFe₃P化合物が観察された。

(2) 粗大なFe₃P化合物は再結晶粒の主要な核形成位置となり、このサイズが小さいほど再結晶粒の核形成が困難になる。一方、 α -Fe粒子が細かく密に分散するほど、粒子のピン止め効果が大きくなり、粒界移動を顕著に抑制する。この効果は再結晶温度を上昇させる。

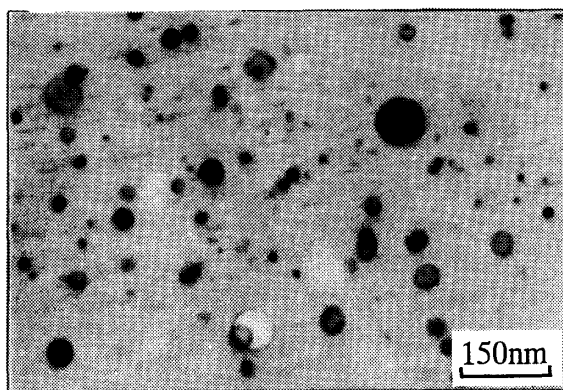


Fig.1 Transmission electron micrograph of a specimen 1 annealed at 773K for 30min.

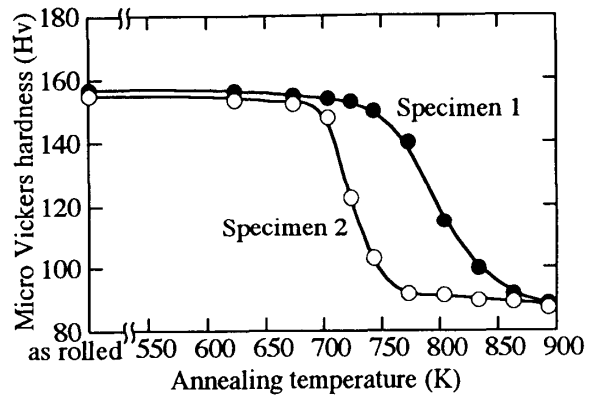


Fig.2 1min isochronal annealing curves .



Fig.3 Nucleation of recrystallization at a Fe₃P particle.

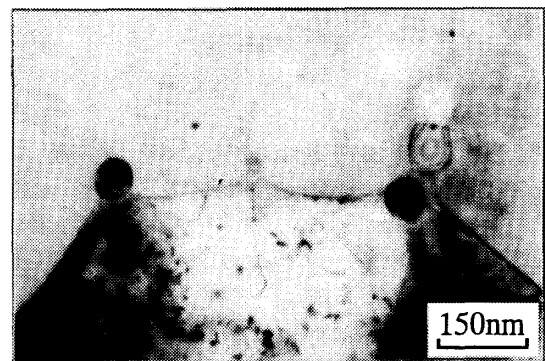


Fig.4 Pinning of a grain boundary in recrystallization by α -Fe particles.

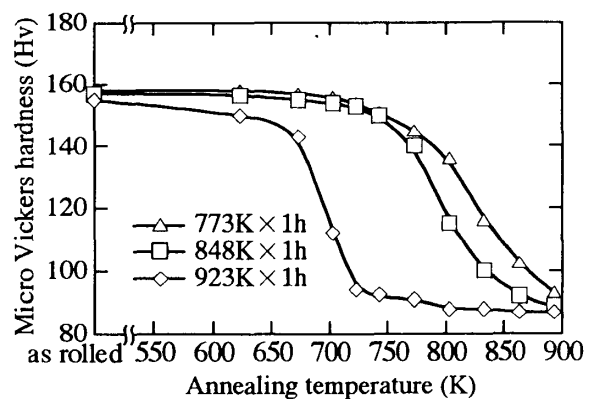


Fig.5 1min isochronal annealing curves for specimens 1 aged at 773,848 and 923K.