Cu-Zr-Ag-Al バルク金属ガラスの平面ひずみ破壊靱性

坂本有卯幾^{1,*} 徳永仁夫² 藤田和孝²
張 偉³ 木村久道³ 井上明久⁴

¹宇部工業高等専門学校専攻科

²宇部工業高等専門学校

³東北大学金属材料研究所

⁴東北大学

J. Japan Inst. Metals, Vol. 72, No. 9 (2008), pp. 644-647

© 2008 The Japan Institute of Metals

Plane-Strain Fracture Toughness in Cu-Zr-Ag-Al Bulk Metallic Glass

Yuuki Sakamoto^{1,*}, Hitoo Tokunaga², Kazutaka Fujita²,
Wei Zhang³, Hisamichi Kimura³ and Akihisa Inoue⁴

¹Advanced Production System Engineering Course, Ube National College of Technology, Ube 755-8555

²Ube National College of Technology, Ube 755-8555

³Institute for Materials Research, Tohoku University, Sendai 980-8577

⁴Tohoku University, Sendai 980-8577

Fracture toughness of the Cu-Zr-Ti bulk metallic glass (Former Cu-Zr BMG) under plane-strain condition could not be evaluated because the BMG with a sufficient thickness for the plane strain condition had not been fabricated. However, as the fracture morphology was similar to that in the Zr-based BMGs having the large plane-strain fracture toughness (K_{IC}), e.g. about $50 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$, it was presumed that the Former Cu-Zr BMG has a large K_{IC} . Recently, in Cu-Zr-Ag-Al BMG (New Cu-Zr BMG), a large sample of 25 mm in diameter became possible to be made. Therefore, in this study, K_{IC} of the New Cu-Zr BMG was investigated. The New Cu-Zr BMG plate sample of $\text{Cu}_{36}\text{Zr}_{48}\text{Ag}_8\text{Al}_8$ was made by a copper mold casting method. Tensile strength was 1850 MPa and Young's modulus was 115 GPa. Compact type specimen with 2.3 mm in thickness and 9.2 mm in width was used. Fatigue pre-crack was induced under stress intensity factor range (ΔK) less than $6 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$, and the fracture toughness test was conducted at a loading rate of $1 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2} \cdot \text{s}^{-1}$. The new Cu-Zr BMG exhibited a K_{IC} of $17 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$. The former Cu-Zr BMG that could not satisfy the plane-strain condition exhibited a fracture toughness of $62 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$. The stretched zone width along the inner fatigue crack front and vein pattern size on the unstable fracture surface in the new Cu-Zr BMG were smaller than those of the former Cu-Zr BMG. Therefore, it seems that the K_{IC} of the new Cu-Zr BMG is smaller than that of the former Cu-Zr BMG.

(Received April 28, 2008; Accepted June 5, 2008)

Keywords: fracture toughness, bulk metallic glass, fracture mechanics, fractography, copper

1. 緒 言

バルク金属ガラス(BMG)は、機械的性質が優れており、特に強度の面では組成により異なるが1~5 GPaと非常に高強度である。また非結晶合金であるため、結晶粒界がなく、高耐食性を有する^{1,2)}。さらにバルク材料であるため、圧縮荷重も受持てるので強度部材として有望である。破壊靱性は、Zr基BMGにおいて、平面ひずみ破壊靱性(K_{IC})が約 $50 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ と大きい値を有している^{3,4)}。また、Cu-Zr基のCu-Zr-Ti BMGでも平面ひずみ条件は満たさないものの約 $60 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ と高い靱性値が得られているため^{5,6)}、Cu-Zr基BMGにおいても、Zr基BMGと同様高い K_{IC} を有する可能性が示されてきている。しかし、Cu-Zr-Ti BMGでは

板厚1 mmまでしか作製することができず、 K_{IC} を求めることが困難であった。最近、Cu-Zr-Ag-Al BMGにおいては直径25 mmの大きな丸棒材が製作できるようになった⁷⁾。

そこで、本研究ではCu-Zr-Ag-Al BMGの破壊靱性試験を行い、 K_{IC} を求めるとともに、破壊形態についても調べ、Cu-Zr-Ti BMGの結果と比較検討する。

2. 試 験 方 法

破壊靱性試験は、米国材料試験協会(ASTM)の規格(E399)に準じて行い、破壊靱性(平面ひずみ条件(試験片板厚(B) $\geq 2.5(K/\sigma_{ys})^2$ 。ここで K は破壊時の最大応力から求めた応力拡大係数。 σ_{ys} =引張強さ(σ_B)とした。)を満たす場合: K_{IC} 、満たさない場合: K_Q)を求めた。試験に用いたBMG(New Cu-Zr BMG)と既報^{5,6)}の比較に用いたBMG(Former Cu-Zr BMG)の化学組成、ヤング率(E)、 σ_B およ

* 宇部工業高等専門学校専攻科学生(Advanced Course Student, Ube National College of Technology)

び casting 法を Table 1 に示す．以後，用いた BMG は表中に記載した略称(New Cu-Zr と Former Cu-Zr BMG)で表わす．

試験片は，板厚(B)：板幅(W)が 1：4 で B が 2.3 mm のコンパクトテンション(CT)タイプとし，ノッチはワイヤー放電加工によって導入した．また試験片表面はき裂を観察し易くするために，#2000 まで研磨紙で研磨後，バフ研磨(研磨液；フジミインコーポレーテッド社製 Al_2O_3 , No. 5)し，ほぼ鏡面に仕上げた．研磨方向はき裂進展方向に対して垂直方向とした．

疲労き裂の導入は，電気油圧サーボ式疲労試験機を用いて応力比 0.1 の部分片振り，応力拡大係数範囲 $\Delta K < 6 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ ，繰返し速度 10 Hz で行った．疲労き裂長さは，走査型電子顕微鏡(SEM)で撮影した破面写真上において，板厚方向に 4 等分して測定した内部の 3 箇所の長さの平均値として求めた．破壊靱性試験も同試験機を用いて負荷速度 $1 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2} \cdot \text{s}^{-1}$ 下で実施した．

試験片表面および破面の観察は金属顕微鏡および SEM を用いて実施した．また，既報⁶⁾と同様の手法を用いて試験片表面におけるせん断帯長さ(SBL)とき裂先端開口変位(CTOD)，および内部でのストレッチゾーン幅(SZW)と破壊靱性の関係を検討した．さらに，疲労き裂前縁における破面のステレオ・マッチング写真を撮り，断面プロフィールを立体観察した．

3. 結果と検討

New Cu-Zr BMG の試験結果に Former Cu-Zr BMG の結果を合わせて Table 2 に示す．表中の下線無しの値は K_{IC} を，下線付きの値は K_Q を示す．Former Cu-Zr BMG では厚い素材を作製できないため平面ひずみ条件を満たすことができず， K_Q のみが得られ，平均で $61 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ を示した．それに対し，New Cu-Zr BMG では平面ひずみ条件を満た

すことができ， K_{IC} が得られ，最大で $19 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ ，最小で $16 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ ，平均で $17 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ を示した．

Former Cu-Zr BMG および New Cu-Zr BMG の破断後の試験片表面における疲労き裂先端近傍の SEM 写真例をそれぞれ Fig. 1 に示す．同図は破断後の分離した試料を個別に撮影し，これらをき裂とせん断帯を目印にして，破断直前の分離前の試験片表面写真として複製したものである．Former Cu-Zr BMG では，疲労き裂先端におけるき裂先端開口変位($(CTOD)_{ex}$, Fig. 1 参照)は Table 2 に示す通り，最大で $24 \mu\text{m}$ ，最小で $8 \mu\text{m}$ であった．これに対し，New Cu-Zr 基 BMG では最大で $4 \mu\text{m}$ ，最小で $1 \mu\text{m}$ であり， $(CTOD)_{ex}$

Fig. 1 Fracture surface morphology near the fatigue crack tip on the specimen surface after fracture. (a) New Cu-Zr BMG and (b) Former Cu-Zr BMG.

Table 1 Chemical composition, tensile strength (σ_B), Young's modulus (E) and casting method of the test BMGs.				
Abbreviation of BMG	Chemical composition	E	σ_B	Casting method
	at%	GPa	MPa	
New Cu-Zr	$\text{Cu}_{36}\text{Zr}_{48}\text{Ag}_8\text{Al}_8$	115	1850	Arc, Tilt
Former Cu-Zr	$\text{Cu}_{60}\text{Zr}_{30}\text{Ti}_{10}$	114	2000	High-frequency induction, Push-out using Ar gas

Table 2 Experimental results of H , $CTOD$, SZW and K (K_{IC} or K_Q).										
Material BMGs	No.	$a/B/W$	$2.5(K/\sigma_{ys})^2$	K_{IC} or K_Q	$K(\text{ave})(K_{IC} \text{ or } K_Q)$	H	H/r_p	$(CTOD)_{ex}$	$(CTOD)_{ex}/(CTOD)_{th}$	$SZW(\text{ave})$
		mm	mm	$\text{MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$	$\text{MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$	μm	—	μm	—	μm
New Cu-Zr	CT-01	4.71/2.31/9.21	0.19	16.2	16.9	25	1.0	3.9	0.9	1
	CT-03	4.74/2.30/9.20	0.20	16.5		53	2.1	1.4	0.3	
	CT-04	4.76/2.30/9.20	0.26	19.0		49	1.5	1.8	0.3	
	CT-05	4.77/2.30/9.20	0.18	15.7		36	1.6	1.5	0.4	
Former Cu-Zr	CT-04	2.32/1.00/4.00	1.54	49.6	61.3	176	0.9	8.2	0.6	5
	CT-07	2.33/0.99/4.00	3.33	73.0		477	1.1	23.9	1.0

Fig. 2 Matching fractographs and section profile near the fatigue crack front.
(a) New Cu-Zr BMG and (b) Former Cu-Zr BMG.

は Former Cu-Zr BMG と比べて小さな値を示した。また、試験片表面における疲労き裂先端近傍でのせん断帯において、荷重軸に垂直方向の最大せん断帯長さ(H , Fig. 1 参照)は、 $(CTOD)_{ex}$ と同様、Table 2に見られるように 176 と 477 μm を示す Former Cu-Zr BMG よりも、25~49 μm を示す New Cu-Zr BMG の方が小さな値を示している。さらにこのせん断帯の発生数は、Former Cu-Zr BMG と比べて、New Cu-Zr BMG では少ない。

破壊力学より理論的な平面応力下における塑性域寸法(r_p)およびき裂先端開口変位($CTOD$) $_{th}$ を求め、それぞれ対応すると見られる H および $(CTOD)_{ex}$ と比較した。 r_p および $(CTOD)_{th}$ はそれぞれ $K^2/(\pi\sigma_{ys}^2)$ および $4K^2/(\pi E\sigma_{ys})$ より求めた⁸⁾。得られた H/r_p , $(CTOD)_{ex}/(CTOD)_{th}$ を Table 2 に示す。 H/r_p はバラツキがあるもののおおよそ 1 に近い値を示し、 $(CTOD)_{ex}/(CTOD)_{th}$ も同様に 1 に近い値を示した。なお、Former Cu-Zr BMG の CT-07 においては、小規

Fig. 3 Scanning electron micrographs on the unstable fracture surface.
(a) New Cu-Zr BMG and (b) Former Cu-Zr BMG.

模降伏条件($a \geq 2.5 (K/\sigma_{ys}^2)$)を満たしていないため、参考値である。

両 Cu-Zr 基 BMG の破面において疲労き裂前縁付近のステレオ・マッチング観察を行った。マッチング破面写真例とその断面プロフィールをそれぞれ Fig. 2 に示す。断面プロフィールより、いずれの BMG の試験片内部においても試験片表面と同様、き裂先端は明らかに開口していることがわかる。また同図で見られる SZW は明らかに(a)の New Cu-Zr BMG の方が(b)の Former Cu-Zr BMG よりも小さい。Table 2 に疲労き裂前縁に沿ったストレッチゾーンの平均幅(SZW(ave))を示す。Former Cu-Zr BMG は $5 \mu\text{m}$ であるのに対し、New Cu-Zr BMG では $1 \mu\text{m}$ 程度を示している。Fig. 3 に板厚中央付近の荷重軸に垂直な不安定破壊面の破面

写真例を示す。ペイン模様的大小と凹凸は Former Cu-Zr BMG に比べて New Cu-Zr BMG の方がいずれも小さい。従来、ペイン模様が小さい BMG は K_{IC} も小さい傾向が見られており⁹⁾、本結果も同様な傾向を示している。

4. 結 言

直径 25 mm まで作製できるガラス形成能の高い $\text{Cu}_{36}\text{Zr}_{48}\text{Ag}_8\text{Al}_8$ (Cu-Zr-Ag-Al) バルク金属ガラス (BMG) の破壊靱性試験を行い、平面ひずみ破壊靱性 (K_{IC}) を求めた。また既に報告している $\text{Cu}_{60}\text{Zr}_{30}\text{Ti}_{10}$ (Cu-Zr-Ti) BMG の破壊靱性試験結果と比較した。得られた結果は以下の通りである。

(1) Cu-Zr-Ag-Al BMG の平面ひずみ破壊靱性値は平均 $17 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ を示した。試験片表面の疲労き裂先端におけるせん断帯長とき裂開口変位は、破壊力学より求められる平面応力下の塑性域寸法とき裂先端開口変位にほぼ等しい値を示した。また、試験片内部においても疲労き裂先端は開口鈍化し、ストレッチゾーンが見られた。

(2) Cu-Zr-Ag-Al BMG と Cu-Zr-Ti BMG において、試験片内部のストレッチゾーン幅を比較すると明らかに Cu-Zr-Ti BMG の方が大きな値を示した。また不安定破壊部のペイン模様を比較すると、同じく Cu-Zr-Ti BMG のペイン模様の方が大きく、凹凸も大きかった。従来ペイン模様は大きい方が K_{IC} は高い値を示す傾向があることが知られている。これらのことより Cu-Zr-Ti BMG は Cu-Zr-Ag-Al BMG よりも大きい K_{IC} を有する可能性が唆された。

本研究は文部科学省科学研究費補助金・特定領域研究「金属ガラスの材料科学」の補助を得て実施し、またその一部は東北大学金属材料研究所附属金属ガラス総合研究センターとの共同研究として実施したものである。記して謝意を表します。

文 献

- 1) K. Fujita: Function & Materials **22**, No. 6(2002) 32-34.
- 2) K. Fujita: KINZOKU **75**(2005) 34-40.
- 3) K. Fujita, A. Okamoto, N. Nishiyama, Y. Yokoyama, H. Kimura and A. Inoue: J. Alloys and Compounds **434-435**(2007) 22-27.
- 4) N. Yoshida, K. Fujita, Y. Yokoyama, H. Kimura and A. Inoue: J. Japan Inst. Metals **71**(2007) 730-735.
- 5) K. Fujita, A. Okamoto, Y. Yokoyama, W. Zhang, N. Nishiyama, C. Ma, H. Kimura and A. Inoue: Abstract 5th Int. Conf. Bulk Metallic Glasses (2006) 89.
- 6) N. Yoshida, H. Tokunaga, K. Fujita, N. Nishiyama, Y. Yokoyama, W. Zhang, H. Kimura and A. Inoue: J. Japan Int. Metals **72**(2008) 305-310.
- 7) Q. Zhang, W. Zhang and A. Inoue: Mater. Trans. **48**(2007) 629-631.
- 8) D. Broek: *Elementary engineering fracture mechanics*, (Battelle, Columbus Laboratories Columbus, Ohio, USA 1978) pp. 93-94.
- 9) K. Fujita, T. Hashimoto, W. Zhang, N. Nishiyama, C. Ma, H. Kimura and A. Inoue: J. Japan Inst. Metals **70**(2006) 816-823.