

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 6 年 6 月 25 日現在

機関番号：12101

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2020～2023

課題番号：20H02474

研究課題名（和文）表面誘起再結晶プロセスに基づく軟磁性パーメンジュール合金の革新

研究課題名（英文）Innovation of soft magnetic permendur alloys based on surface-induced recrystallization

研究代表者

佐藤 成男（Sato, Shigeo）

茨城大学・応用理工学野・教授

研究者番号：40509056

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,900,000円

研究成果の概要（和文）：パーメンジュール(Fe-Co)合金に対し、「結晶方位による表面エネルギーの違い」と「拡散誘起の相変態」を駆動力とした結晶方位制御プロセスを実現することを目的とする。パーメンジュール合金のCoを20～30%まで減量すると透磁率は低下する。この問題を解決するには、板表面に透磁率に優れた{100}面を持つ結晶方位制御が不可欠となる。そこで、パーメンジュール合金にMn、脱Mn熱処理により表面エネルギーの低い{100}粒を板表層に核生成させ、粒成長させる。中性子回折から観察された相変態温度をもとに熱処理温度を最適化し、熱処理を行ったところ、表面に{100}再結晶集合組織を形成させることに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

熱処理に伴う組成変化を表面で生じさせ、それに伴う相変態を駆動力とした表面再結晶現象はほぼ未開拓の学術分野である。本研究ではこの表面再結晶を利用したND//{100}集合組織制御を実現している点に学術的意義がある。特に、この手法を優れたCoを減量したパーメンジュール合金に適用したことにオリジナリティがある。{100}集合組織を持つCo減量パーメンジュール合金は軟磁気特性と高い飽和磁束密度を有することから、ドローンやeVTOLなどに向け、軽量高出力のモータコアとして活用されることが期待される。

研究成果の概要（英文）：The purpose of this project is to realize a crystal orientation control process for permendur (Fe-Co) alloys driven by the “difference in surface energy depending on crystal orientation” and “diffusion-induced phase transformation”. When the Co content of permendur alloys is reduced to 20-30%, the magnetic permeability decreases. To solve this problem, it is essential to control the crystallographic orientation of the plate surface with {100} planes, which have excellent permeability. Therefore, {100} grains with low surface energy are nucleated and grown on the plate surface layer by Mn and de-Mn heat treatment of the permendur alloy. We optimized the heat treatment temperatures based on the phase transformation temperatures observed from neutron diffraction, and succeeded in forming a {100} recrystallized texture on the surface.

研究分野：組織制御学

キーワード：パーメンジュール合金 集合組織 相変態 中性子回折 軟磁気特性

### 1. 研究開始当初の背景

モータや電磁アクチュエータなどに利用される軟磁性材料には、低保磁力、高透磁率、高磁束密度が要求される。この要求を満たす代表的な金属材料として珪素鋼板（例えば Fe-3%Si）やパーマロイ（例えば Fe-45%Ni）などが挙げられる。一方、次世代自動車の高効率モータやドローンに利用される小型高出力モータにおいては、高磁束密度を持つパーメンジュール（例えば Fe-49%Co-2%V）の利用が期待されている。珪素鋼板やパーマロイの飽和磁束密度がそれぞれ 1.94、1.65 T であるのに対し、パーメンジュールの飽和磁束密度は 2.4 T と極めて高い。加えて、パーメンジュールの最大透磁率は珪素鉄のそれと同等であり、パーメンジュールはトップクラスの軟磁性材料と言える。ただし、コバルト量が多いため次の欠点があり、用途は限定されている。

- ・高い原料コスト
- ・低い加工性（破断伸び：2%程度）

このためコバルト減量が望まれる。

一方、パーメンジュール合金のコバルト組成を 20~30%程度まで減らしても飽和磁束密度はおおよそ保たれる。これは、Slater-Pauling 曲線が示す通り、ボーア磁子数の最大が Fe:Co=1:1 より Fe rich 側にあることによる。従って、20~30%Co パーメンジュールは高い飽和磁束密度と同時に、製造コスト削減と延性向上（破断伸びは 30%程度まで上昇）を実現できる。一方、Co 減量は次の理由により透磁率を低下させる。20~30%Co パーメンジュールでは磁気異方性が大きく、磁化容易軸の<100>方位と磁化困難軸の<111>方位の透磁率の差が大きい。<111>方位の低透磁率結晶粒が存在するランダム方位の組織の場合、透磁率は低くなる。

パーメンジュール合金の Co 減量に伴う透磁率低下の問題を解決するには、板面内に<111>方向をもたない結晶方位制御法の開発が必要となる。板面内に<111>方向がない集合組織として、板面法線方向に{100}面を持つ{100}-fiber の集合組織や、さらに圧延方向に<001>を持つ結晶方位制御を加えた cube 方位{100}<001>が挙げられる。cube 方位は交差圧延した後、高温熱処理による二次再結晶で得られることが報告されている。また、申請グループは 49%パーメンジュールに対し、低ひずみ速度での高温圧縮変形により圧縮面に{100}面を持つ集合組織形成に成功した。ただし、これらの方法は、実用的な製造プロセスには適用しがたいものであった。したがって、Co を減量したパーメンジュール合金に対し、工業的に実用的な製造プロセスにて結晶方位制御を実現するスキーム開発が望まれている。

### 2. 研究の目的

Co を減量したパーメンジュール合金に対し、結晶方位による表面エネルギーの特徴と合金元素の拡散現象を活用した結晶方位制御法を確立する。このプロセスは図 1 に示す「表層再結晶を行う第一熱処理」と「表層再結晶粒をシードとした板内部への粒成長を行う第二熱処理」からなる。第一熱処理では{100}粒の表面エネルギーが低い特徴を利用する。熱処理時の脱 Mn に伴うオーステナイト ( $\gamma$ )  $\rightarrow$  フェライト ( $\alpha$ ) 変態を再結晶駆動力とし、表層における再結晶を生じさせる。結晶方位の選択は表面エネルギーの小さい{100}粒にて優先的に生じる。第二熱処理では脱炭に伴う  $\gamma \rightarrow \alpha$  変態を駆動力とし、表層再結晶粒をシードに粒成長を生じさせる。

以上の相変態を駆動力とした表面再結晶現象をもとに cube 方位{100}<001>または{100}-fiber の集合組織を実現する結晶方位制御法を確立することを目的とする。

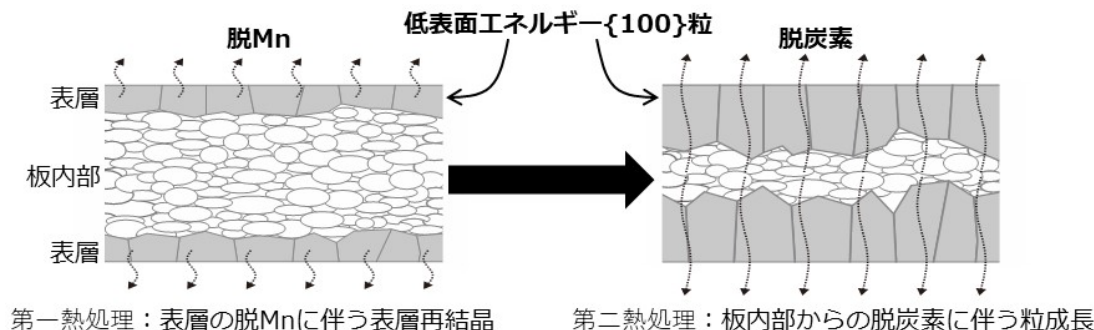


図 1 本申請で実施する 2 段階の熱処理による再結晶、粒成長モデル。

### 3. 研究の方法

Mn と炭素を含有した 20~30%Co パーメンジュール合金の圧延板（板厚：0.3~0.5 mm）を、真空中焼鈍（図 1 の第一熱処理）と水素雰囲気下における脱炭焼鈍（図 1 の第二熱処理）を行う。いずれの熱処理においても、Mn や炭素の脱離に伴う  $\gamma \rightarrow \alpha$  変態とそれに伴う集合組織形成を利用する。

再結晶が生じる 800°C以上の温度域にて  $\gamma \rightarrow \alpha$  変態が生じる組成を探索する。三元系状態図と

珪素鋼板で得られた実績をもとに Fe-25%Co-1%Mn-0.1%C をスタート組成とし、Mn や炭素の量を変える。また、フェライト安定化元素である Si を添加し、変態温度領域を制御する。効率的に組成探索を行うため、Fe-Co-Mn-Si-C 系の相平衡計算を CALPHAD プログラムにより行う。加えて、正確な相変態温度を確認するため高温中性子回折による相変態その場観察を行う。各熱処理による組織変化は SEM/EBSD を用い観察する。これらの実験から、最適な熱処理条件や合金組成、初期組織を導く。

#### 4. 研究成果

冷間圧延を施した Fe-25%Co-1%Mn-0.1%C について、912°Cにて 5 時間真空焼鈍を行った際、得られた ND 面の ND 方向 IPF マップと {100} 極点図を図 2 に示す。ND 面の結晶粒は等軸粒であり、再結晶が生じたことを確認できる。ND//{100} の極密度は 3.8 と必ずしも高くはないが、Cube 集合組織の形成に成功していることを確認できる。

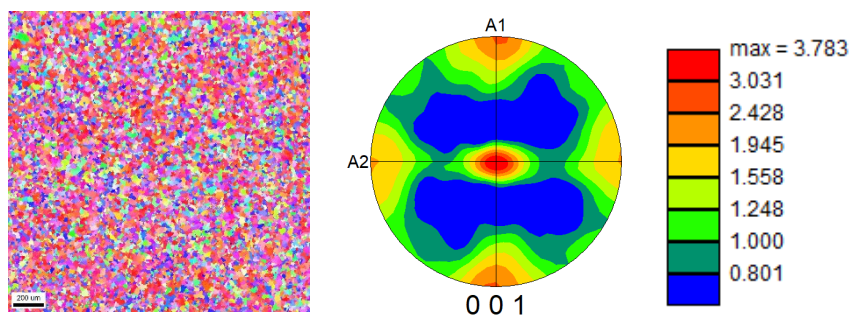


図 2 Fe-25%Co-1%Mn-0.1%C の 912°C×5 時間焼鈍試料の ND 面組織と {100} 極点図。

912°Cの焼鈍時間を 15 時間とした場合の ND 面の ND 方向 IPF マップと {100} 極点図を図 3 に示す。ND//{100} の極密度は僅かに低下し、また、面内方向の結晶方位分布にも乱れが生じていることを確認できる。したがって、この合金組成に対する 912°Cの熱処理では 5 時間を超えた熱処理が必ずしも有効ではないことが示唆される。

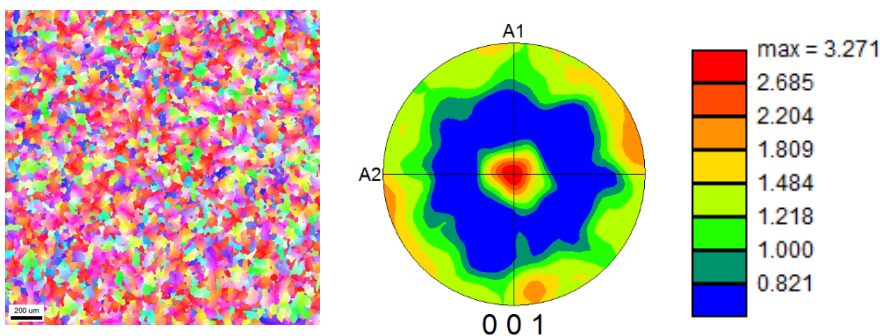


図 3 Fe-25%Co-1%Mn-0.1%C の 912°C×15 時間焼鈍試料の ND 面組織と {100} 極点図。

冷間圧延を施した Fe-25%Co-1%Mn-2%Si-0.1%C について、912°Cにて 15 時間真空焼鈍を行った試料の ND 面の ND 方向 IPF マップと {100} 極点図を図 4 に示す。ND//{100} の極密度は 23 と著しく向上し、また、面内方向の結晶方位もまた rotated Cube の強い方位制御が実現された。Si 添加により、相変態温度が変わり、再結晶の最適温度となったことが要因として考えられる。

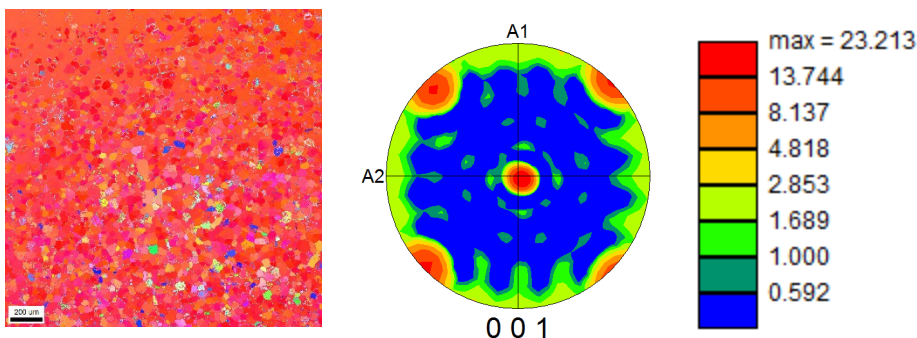


図 4 Fe-25%Co-1%Mn-2%Si-0.1%C の 912°C×15 時間焼鈍試料の ND 面組織と {100} 極点図。

以上のように、Coを減量したパーメンジュール合金について、Mnを添加することにより、Mn脱離に伴う相変態誘起の表面再結晶に成功した。特に、合金組成と熱処理温度の最適化により、高極密度かつ、板面の面内方向の結晶方位も制御可能であることが実証された。一方、熱処理温度や合金組成との関係、さらに熱処理前の圧延組織の影響の理解は十分ではなく、さらなる研究により、この分野の学理が確立できると期待される。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計10件（うち査読付論文 10件 / うち国際共著 1件 / うちオープンアクセス 7件）

1. 著者名 Urakawa Kiyoshi, Kasuya Motohiro, Sato Shigeo, Kanie Kiyoshi, Owari Naoyuki, Ebata Takashi, Suzuki Shigeru	4. 巻 59
2. 論文標題 Cold Workability and Magnetic Properties of FeCo-V Alloys With the Addition of a Small Amount of Al	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 IEEE Transactions on Magnetics	6. 最初と最後の頁 1~5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1109/TMAG.2023.3282670	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 佐藤李行、河原幸汰、富田俊郎、星川晃範、鈴木茂、佐藤成男	4. 巻 55
2. 論文標題 中性子回折によるパーメンジュール合金の高温相変態解析	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 X線分析の進歩	6. 最初と最後の頁 327~334
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Shigeru Suzuki, Kazuhiro Mizusawa, Toru Kawamata, Rie Yamauchi Umetsu, Tsuyoshi Kumagai, Tsuguo Fukuda, Shigeo Sato	4. 巻 62
2. 論文標題 Characteristic twin formation in body-centered cubic Fe-Ga alloy single crystals with different orientations	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 ISIJ International	6. 最初と最後の頁 957-962
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2355/isijinternational.ISIJINT-2021-345	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Yusuke Onuki, Kazuki Umemura, Kazuki Fujiwara, Yasuaki Tanaka, Toshiro Tomida, Kaori Kawano, Shigeo Sato	4. 巻 12
2. 論文標題 Microstructure formation and carbon partitioning with austenite decomposition during isothermal heating process in Fe-Si-Mn-C steel monitored by in situ time-of-flight neutron diffraction	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Metals	6. 最初と最後の頁 957-1-957-15
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/met12060957	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Yoshimasa Takayama, Yihe Xu, Tsuyoshi Yoshida, Hiroki Tanaka, Yusuke Onuki and Shigeo Sato	4. 巻 1121
2. 論文標題 Texture evolutions in aluminum and Al-3%Mg alloy subjected to shear deformation and subsequent annealing	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Materials Science and Engineering	6. 最初と最後の頁 012017, 1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1757-899X/1121/1/012017	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 S. Suzuki, Y. Onuki, M. Uchida, S. Sato, T. Naruse, M. Watanabe, T. Sato and T. Ebata	4. 巻 1121
2. 論文標題 Grain growth in soft magnetic ferritic stainless steels under compressive stresses at high temperatures	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Materials Science and Engineering	6. 最初と最後の頁 012020, 1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1757-899X/1121/1/012020	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 T. Tomida and S. Sato	4. 巻 1121
2. 論文標題 Variant Selection in Phase Transformation and its Influence on Texture and Martensite Starting Temperature in Steel	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Materials Science and Engineering	6. 最初と最後の頁 012021, 1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1757-899X/1121/1/012021	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Toshiro Tomida, Sven C. Vogel, Yusuke Onuki and Shigeo Sato	4. 巻 11
2. 論文標題 Texture Memory in Hexagonal Metals and Its Mechanism	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Metals	6. 最初と最後の頁 1653, 1-25
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/met11101653	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Nakagawa Koutarou, Hayashi Momoki, Takano-Satoh Kozue, Matsunaga Hirotaka, Mori Hiroyuki, Maki Kazunari, Onuki Yusuke, Suzuki Shigeru, Sato Shigeo	4. 巻 4
2. 論文標題 Characterization of Dislocation Rearrangement in FCC Metals during Work Hardening Using X-ray Diffraction Line-Profile Analysis	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Quantum Beam Science	6. 最初と最後の頁 36 ~ 36
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/qubs4040036	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Onuki Yusuke, Sato Shigeo	4. 巻 4
2. 論文標題 In Situ Observation for Deformation-Induced Martensite Transformation (DITM) during Tensile Deformation of 304 Stainless Steel Using Neutron Diffraction. PART I: Mechanical Response	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Quantum Beam Science	6. 最初と最後の頁 31 ~ 31
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/qubs4030031	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計20件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 7件)

1. 発表者名 Toshiro Tomida, Shigeo Sato
2. 発表標題 A mechanism of austenite grain size dependency of Ms by stored elastic energy in neighbor parent grains and influence of crystallographic texture
3. 学会等名 THERMEC ' 2023 ( 国際学会 )
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 富田俊郎, 佐藤成男
2. 発表標題 オーステナイト結晶粒の微細化によるMsの変化の機構と集合組織の影響
3. 学会等名 日本鉄鋼協会第186回秋季講演大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 佐藤季行, 河原幸汰, 富田俊郎, 星川晃範, 鈴木茂, 佐藤成男
2. 発表標題 中性子回折によるパーメンジュール合金の高温相変態解析
3. 学会等名 第59回X線分析討論会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 富田俊郎, Sven Vogel, Dan Savage, Amy Fluke, 佐藤成男
2. 発表標題 Fe-Mn-Si-0.6%C 鋼の 繰り返し変態の集合組織変化とバリエーション選択則
3. 学会等名 日本金属学会 第2回 結晶性材料の結晶配向評価および結晶方位解析技術研究会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 富田俊郎, 小貫祐介, 梅村和希, 田中泰明, 藤原知哉, 諏訪嘉宏, 河野佳織, 佐藤成男
2. 発表標題 Fe-Mn-Si-0.6%C 鋼の 繰り返し変態の集合組織変化とバリエーション選択則
3. 学会等名 日本金属学会 第1回 結晶性材料の結晶配向評価および結晶方位解析技術研究会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 河原幸汰, 梅村和希, 小貫祐介, 星川晃範, 富田俊郎, 佐藤成男
2. 発表標題 中性子回折を用いた低合金TRIP鋼の熱処理中における組織形成過程の観察
3. 学会等名 第58回X線分析討論会
4. 発表年 2022年



1. 発表者名 佐藤成男
2. 発表標題 金属材料の熱処理に伴うGN転位とSS転位の回復挙動
3. 学会等名 日本鉄鋼協会シンポジウム「鉄鋼材料特性改善に資する評価・分析・解析の進歩」
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Yusuke Onuki, Toshiro Tomida, Shigeo Sato
2. 発表標題 Neutron metallurgy by using iMATERIA: Time-Of-Flight type 90wder diffraction instrument
3. 学会等名 3-day International Conference on Materials Science (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 鈴木茂, 佐藤成男, 田中俊一郎
2. 発表標題 機能性多結晶鉄合金における残留応力の評価
3. 学会等名 日本金属学会2022年秋期(第171回)講演大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 田中孝明, 高城重宏, 小貫祐介, 佐藤成男
2. 発表標題 中性子回折を利用した純鉄98%圧延板の結晶方位別転密度評価
3. 学会等名 金属第62回 鉄鋼第65回 中国四国支部講演大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 田中孝明, 高城重宏, 小貫祐介, 佐藤成男
2. 発表標題 中性子ラインプロファイル解析による圧延板の結晶方位別転位密度評価
3. 学会等名 日本鉄鋼協会第183回春季講演大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Toshiro Tomida, Shigeo Sato
2. 発表標題 A mechanism of austenite grain size dependency of Ms by stored elastic energy in neighbor parent grains
3. 学会等名 16th International Conference on Martensitic Transformation (ICOMAT 2022) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 鈴木茂, 川又透, 梅津理恵, 佐藤成男, 田中俊一郎
2. 発表標題 弾性異方性の大きい鉄合金における微小ひずみの評価
3. 学会等名 日本金属学会2021年秋期(第169回)講演大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 富田俊郎, Sven C. Vogel, 小貫祐介, 佐藤成男
2. 発表標題 Tiの集合組織記憶機構の解析
3. 学会等名 第4回金属・無機・有機材料の結晶方位解析と応用技術研究会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Toshiro Tomida, Shigeo Sato
2. 発表標題 A mechanism of austenite grain size dependency of Ms by stored elastic energy in neighbor parent grains
3. 学会等名 16th International Conference on Martensitic Transformation (ICOMAT 2022) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 富田俊郎、小貫祐介、佐藤成男
2. 発表標題 CP-TiのHCP BCC HCP変態における集合組織記憶効果とその機構
3. 学会等名 日本鉄鋼協会第181回春季講演大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 小貫祐介、佐藤成男
2. 発表標題 SUS304ステンレス鋼における '加工誘起マルテンサイト変態
3. 学会等名 日本鉄鋼協会第181回春季講演大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 T. Tomida, S. Sato
2. 発表標題 Variant selection in phase transformation and its influence on texture and martensite starting temperature in steel
3. 学会等名 The 19th International Conference on Textures of Materials (ICOTOM 19) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 T. Tomida, Y. Onuki, S. C. Vogel, S. Sato
2. 発表標題 Study of texture memory in Ti by time-of-flight neutron diffraction and texture prediction via harmonic method
3. 学会等名 The 19th International Conference on Textures of Materials (ICOTOM 19) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 S. Sato, K. Hanawa, Y. Onuki, Y. Uemura, A. Hoshikawa, H. Otsuka, Y. Chiba, S. Suzuki
2. 発表標題 Interplay between phase transformation and dislocation evolution in iron-based shape memory alloys
3. 学会等名 The 19th International Conference on Textures of Materials (ICOTOM 19) (国際学会)
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

量子ビーム組織解析研究室 <a href="http://crystal.appl-beam.ibaraki.ac.jp/index.html">http://crystal.appl-beam.ibaraki.ac.jp/index.html</a>
---

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	鈴木 茂  (Suzuki Shigeru)  (40143028)	東北大学・マイクロシステム融合研究開発センター・教授   (11301)	磁気特性評価と熱処理条件の検討

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	星川 晃範  (Hoshikawa Akinonri)  (60391257)	茨城大学・フロンティア応用原子科学研究センター・産学官連携准教授    (12101)	中性子回折測定と解析
研究分担者	永野 隆敏  (Nagano Takatoshi)  (70343621)	茨城大学・理工学研究科（工学野）・講師    (12101)	熱力学計算
研究分担者	小貫 祐介  (Onuki Yusuke)  (50746998)	茨城大学・フロンティア応用原子科学研究センター・産学官連携助教    (12101)	中性子回折測定と解析

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	富田 俊郎  (Tomida Toshiro)	茨城大学・フロンティア応用原子科学研究センター・客員教授	合金組成、熱処理条件、圧延条件の検討

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関