

# TiN被覆による一方向性珪素鋼板の超低鉄損化

井口 征夫\*・鈴木 一弘\*・小林 康宏\*<sup>2</sup>

Grain Oriented Silicon Steel Sheet with TiN Film Characterized by Ultra-low Iron Loss

Yukio INOKUTI, Kazuhiro SUZUKI and Yasuhiro KOBAYASHI

**Synopsis :** An improvement in the iron loss in grain oriented silicon steel sheet was investigated for TiN ceramic coating produced by ion plating on polished silicon steel sheets. The influence of the coating conditions on magnetic properties was also investigated, relating to the thickness, bias voltage, coating temperature, tension, vacuum pressure and reactive N<sub>2</sub> gas used for TiN ceramic coating by the hollow cathode discharge (HCD) method.

The experimental results obtained are summarized as follows.

(1) The magnetic flux density B<sub>9</sub>(T) of silicon steel sheets with a thin TiN film increases moderately to 0.004~0.015T, while the iron loss W<sub>17/50</sub>(W/kg) is improved dramatically to 0.11~0.23W/kg.

(2) The iron loss in the TiN-coated silicon steel sheet by the HCD method is most improved under the coating conditions of (a) the thickness above 0.7μm, (b) bias voltages in the range of -50 to -100V, (c) coating temperatures in the range of 573 to 673K, (d) tensions in the range of 0.9 to 5MPa, (e) vacuum pressures above 0.3Pa, and (f) reactive N<sub>2</sub> gas above 150SCCM.

(3) The domain structure of the chemically polished and TiN-coated areas inside a single giant secondary Goss grain changed drastically, showing four to six narrow wall spacings from an original 180° main domain with large black and white wall spacings elongated in the rolling direction.

**Key words :** grain oriented silicon steel ; thin TiN film coating ; ultra-low iron loss ; high magnetic flux density ; magnetostriction ; lamination factor ; strong surface tension ; hysteresis loss ; eddy current loss ; domain refinement ; HCD method.

## 1. 緒言

一方向性珪素鋼板は、Fig. 1の模式図<sup>1)</sup>で示すように製品の2次再結晶を(110)[001]方位、すなわちGoss方位に高度に集積させ、そして表面にフォスフェイト下地被膜を形成させ、さらにその上に熱膨張係数の小さい絶縁被膜を施したものである。複雑、多岐の工程処理を経て製造され、且つ製造工程上の諸条件の制御が厳格であるため「鉄の芸術品」とも言われている。このような一方向性珪素鋼板は主として変圧器その他電気機器の鉄芯として使用されており、磁気特性として製品の磁束密度が高く、鉄損の低く、表面性状の優れていることが要求される。エネルギー危機を境にして、電力損失の低減を至上とする要請が強まり、鉄損のより低い一方向性珪素鋼板の製造はますます重要なものとなってきている。

Table 1には一方向性珪素鋼板の鉄損に影響する要因と改善方法をまとめて示してある<sup>2)</sup>。一方向性珪素鋼板の低鉄損化は、製品の2次再結晶粒のGoss方位集積度を高めることを主体にした冶金学的観点から進められてきた。これにより2次再結晶粒の[100]軸の圧延方向への角度のずれの程

度が平均3-4°と大幅に改善されたために、現行の高磁束密度一方向性珪素鋼板<sup>3)4)</sup>においては鉄損が飛躍的に低減した。このヒステリシス損の改善により、珪素鋼板の鉄損の約70%は渦電流損で占められるようになり、研究開発の主目的は渦電流損の低減へと移行した。この渦電流損の改善はTable 1の中の2)に示すように、製品板厚を薄くする、Si

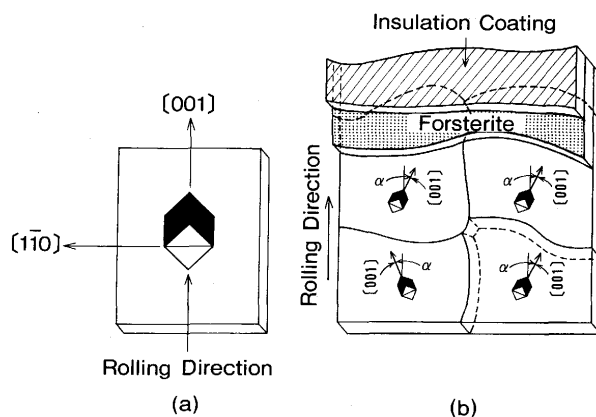


Fig. 1. Schematic diagrams<sup>1)</sup> showing (a) Goss orientation and (b) grain oriented silicon steel product.

平成6年6月15日受付 平成6年9月2日受理 (Received on June 15, 1994; Accepted on Sep. 2, 1994)

\* 川崎製鉄(株)鉄鋼研究所 (Iron & Steel Research Laboratories, Kawasaki Steel Corp., 1 Kawasaki-cho Chuo-ku Chiba 260)

\* 2川崎製鉄(株)知的財産部 (Intellectual Property Dept. Kawasaki Steel Corp.)

Table 1. Factor and methods for the improvement of iron loss in grain oriented silicon steel.

Iron loss	Factor	Improvement	
		Method	State
1) Hysteresis loss	a) Orientation	Sharpness of secondary grains	Ideally (110) [001]
	b) Impurities	Purification	Low level
	c) Surface and interface	Smooth	Mirror Surface
2) Eddy current loss	A) Thickness	Decrease of sheet thickness	Free from sharpness of secondary grains
	B) Resistivity	Increase of Si content	Free from deterioration in steel production
	C) Domain spacing	Reduced grain size	Small grains
		Increased tension	Surface tension by coating
	Artificial grain boundary	Refined domains by Laser, Plasma, etc.	

含有量を増加して電気抵抗を高くする、結晶粒径を小さくする等の方法による開発が検討された。しかしながら、Goss方位2次再結晶粒の集積度を損なわずに、製品板厚や結晶粒径を減少させることは容易でなく限界があった。このような冶金学的観点からの渦電流損の改善方法とは異なり、物理的に180°主磁区の磁壁間隔を狭くすることによって渦電流損を低減させる方法も開発された。その中の一つの方法はGoss方位2次再結晶粒表面のフォルステライト下地被膜上に熱膨張係数の小さい絶縁被膜<sup>5)6)</sup>を塗布して珪素鋼板表面近傍に張力を付加し、鉄損を低減させる方法が開発された。その他の方法として2次再結晶処理後の珪素鋼板表面に局部的に微小歪<sup>7)8)</sup>あるいは溝<sup>9)10)</sup>の人工粒界を導入して180°主磁区の磁壁間隔を細分化することにより渦電流損を低減させる方法も開発された。これらの技術開発によって、現行の一方向性珪素鋼板は極限に近いと考えられるレベルにまで鉄損が改善されてきている。

最近、低鉄損化の一手法として、研磨により平滑化した一方向性珪素鋼板表面上にPVD<sup>11)</sup>およびCVD<sup>12)</sup>を用いてセラミックスを被覆すると、珪素鋼板の鉄損は最大で40%と大幅に低減されることが発見された。さらに、この方法は①高磁束密度、②低磁歪特性、③高占積率等、現行の珪素鋼板では全く得られていない優れた特性を示すことも明らかにされた。

本報は、PVDおよびCVDを用いて研磨した一方向性珪素鋼板の表面上にTiNを被覆した典型的な磁気特性の実験結果について述べた後、優れた磁気特性が得られるPVDのコーティング条件について検討を行った。特に、本報においてはPVDの中の一手法であるHCD (Hollow Cathode Discharge) 法を用いて、一方向性珪素鋼板の表面上にTiNを被覆する際のコーティング条件の相違による磁気特性への

影響、磁歪の圧縮応力特性、磁区構造および磁気特性向上機構について述べる。

## 2. 実験方法

0.23mm厚の一方向性珪素鋼板の製品板((1)の素材成分はC:0.043(以下mass%で示す。), Si:3.31, Mn:0.072, Se:0.019, Sb:0.023, Mo:0.012, および(2)の素材成分はC:0.040, Si:3.28, Mn:0.070, S:0.017)を出発素材として用いた。この製品板は $0.23 \times 30 \times 300\text{mm}^3$ および $0.23 \times 150 \times 300\text{mm}^3$ に切断し、その後1073Kで7.2ksの歪み取り焼鈍を行った。これらの試料サイズは磁気特性測定の際のSST (Single Sheet Tester, 単板試験器) フレームの大きさが決められているため、この2種類の大きさの試料を用いた。また、本実験においては出発素材の磁束密度が以後の磁気特性に大きな影響を与えるので、磁束密度の異なる3種類の試料 [ $B_8$ が(A):1.93T, (B):1.90Tおよび(C):1.87Tの3レベル]を用いた。なお、磁束密度が(A):1.93Tと(B):1.90Tのレベルは(1)の素材成分の一方向性珪素鋼板の製品板、(C):1.87Tのレベルは(2)の素材成分の製品板を用いた。さらに、珪素鋼板の磁気特性は同一試料を用いて、途中の工程で処理した後の試料について磁気測定を行って、各工程の影響を詳細に調査した。なお磁気特性は磁化特性と鉄損特性とにより表示されるが、磁化特性は磁化力800A/mにおける磁束密度 ( $B_8$ : T) により、鉄損特性は周波数50Hz, 磁束密度1.7Tにおける鉄損 ( $W_{17/50}$ : W/kg) によって表示した。

次に、これらの珪素鋼板の絶縁被膜は溶融NaOH中に浸漬して除去し、さらに10%HCl (353K) 中に浸漬してフォルステライト下地被膜を除去後、鋼板表面を3%HFと97% $\text{H}_2\text{O}_2$ で化学研磨して表面を平滑にした。

表面研磨後の一方向性珪素鋼板表面上のTiN被覆はFig. 2の模式図<sup>11)</sup>で示すようなイオンプレーティング装置を用いた。Fig. 2の装置は一つのイオンプレーティング装置でHCD (Hollow Cathode Discharge) 法とEB (Electron

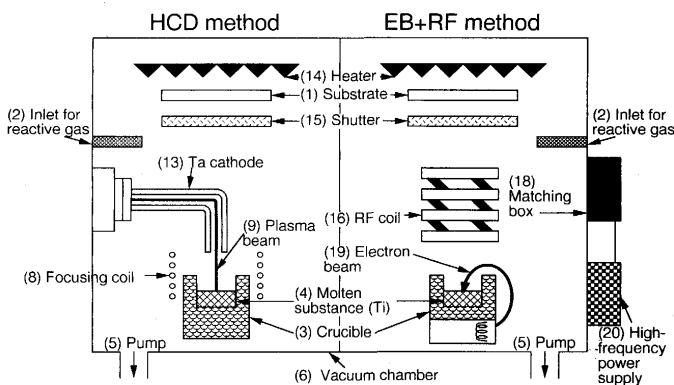


Fig. 2. Schematic diagram<sup>11)</sup> of ion plating PVD apparatus by the HCD and EB+RF methods.

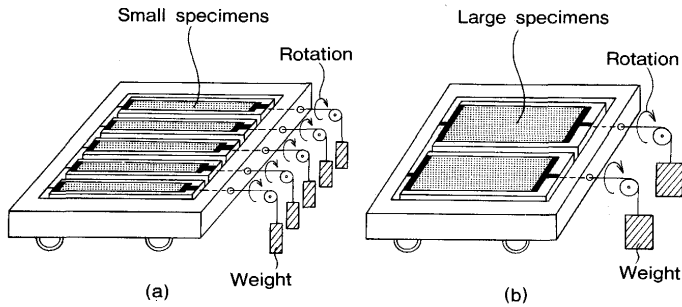


Fig. 3. Schematic diagram<sup>11)</sup> of the tensile holders for (a) small and (b) large specimens.

Beam) + RF (Radio Frequency) 法の 2 手法のコーティング処理が出来るのが特徴である。この装置には、Fig. 3 の模式図<sup>11)</sup>で示すように鋼板に 0.5-20MPa の引張張力を付加し、且つ鋼板の表・裏面が均一に成膜できるように一軸回転しながらコーティングできる治具を新たに作成し装着した。特に、この装置においては試料条件を同一に出来、珪素鋼板の磁気特性へのコーティング手法の影響調査が可能であること、また、コーティング中の板変形を防止できること、さらに張力下でのセラミック・コーティング処理が可能であること、良好な磁気特性を示す<sup>13)</sup>適正張力下でのコーティングが出来るのが特徴である。なお、コーティングの際の珪素鋼板への張力は Fig. 3 の重りの重量を変えることによって行ったが、通常条件は 3.5MPa の張力を付与した。イオンプレーティング処理条件は次に示す条件で行った。HCD 法では投入パワー：20kW、真空度：0.093Pa、バイアス電圧：-100V、基板温度：673K で行った。次に、EB+RF 法は EB の投入パワー：15kW、真空度：0.040Pa、バイアス電圧：-500V、基板温度：673K で行った。また、30×300mm の鋼板のコーティングにおいては 5 枚、150×300mm の鋼板のコーティングにおいては 2 枚を同時にコーティング処理した。一方、CVD は熱 CVD 法およびプラズマ CVD 法<sup>13)14)</sup>を用いて TiN を約 1.0μm 厚被覆した。これらの処理を施した後、珪素鋼板の磁気特性を測定するとともに、さらに一部の試料においては磁歪、焼鈍特性を測定した。また工程途中の珪素鋼板について電顕による磁区観察も行った。

さらに、表面に TiN 被覆した一部の珪素鋼板は鋼板表面上にリン酸塩とコロイダルシリカを主成分とする絶縁被膜 (約 1.5μm 厚) を塗布した後、1073K で 7.2ks の歪み取り焼鈍を行った。その後さらに TiN 被覆一方向性珪素鋼板の磁区細分化効果を調査するため一部の試料は圧延方向に直角方向に 6mm 間隔でナイフで微小歪みを導入し磁気特性を測定した。

### 3. 実験結果

#### 3・1 PVD と CVD により TiN 被覆したときの一方向性珪素鋼板の磁気特性変化

磁束密度の異なる 3 種類の一方向性珪素鋼板 [(A)  $B_8 =$

1.930T,  $W_{17/50} = 0.88W/kg$ , (B)  $B_8 = 1.900T$ ,  $W_{17/50} = 0.90W/kg$  および (C)  $B_8 = 1.872T$ ,  $W_{17/50} = 0.95W/kg$  の 3 レベル] を化学研磨し、PVD (HCD 法) と熱 CVD 法およびプラズマ CVD 法を用いて TiN を被覆し、その後鋼板表面上に絶縁被膜を塗布した後 1073K で 7.2ks の歪み取り焼鈍を施し、さらに磁区細分化処理を行った。これら各工程途中における珪素鋼板の磁束密度  $B_8$  (T) と鉄損  $W_{17/50}$  (W/kg) の変化を Fig. 4<sup>12)</sup> に示す。なお、Fig. 4 の各工程における磁気特性値は磁束密度の異なる 3 種類の珪素鋼板をそれぞれ用いて順次 5 枚の珪素鋼板の同一試料について各工程処理後の磁気特性変化を追跡したものである。Fig. 4 から明らかなように、化学研磨による被膜除去により、珪素鋼板の磁束密度は 0.004~0.01T 向上、鉄損は 0.04~0.10W/kg 向上する。化学研磨後の TiN 被覆により、珪素鋼板の磁束密度は 0.001~0.005T 向上するが、鉄損は 0.07~0.14W/kg と大幅に向上するのが注目される。このときの鉄損向上度は磁束密度の高いものほど顕著である。[Fig. 4 の中で鉄損の向上が (C) ⇒ (B) ⇒ (A) の試料の順に大きい。] 次の工程の絶縁被膜塗布後 1073K で 7.2ks の歪み取り焼鈍を施すことにより、磁束密度は 0.001~0.005T 低下するが、鉄損は 0.01W/kg 以下で殆ど変化しない。さらに磁区細分化処理により、磁束密度は 0.001~0.004T と若干低下するが、鉄損は 0.04~0.10W/kg の大幅な向上を示す。以上のように、HCD 法、熱 CVD 法およびプラズマ CVD 法共に珪素鋼板の磁束密度は各工程処理によって若干の変化 (0.005T 以内) しか認められないが、鉄損は 0.16~0.33W/kg と大幅に向上するのが注目され

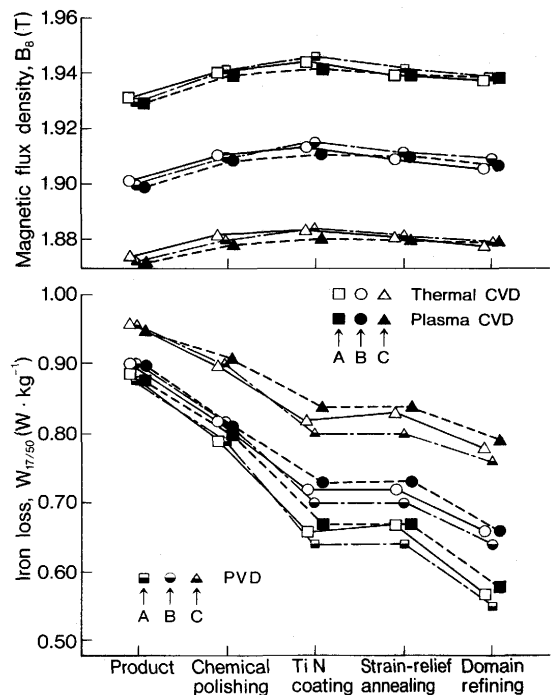


Fig. 4. Variations<sup>12)</sup> in magnetic flux density  $B_8$  (T) and iron loss  $W_{17/50}$  (W/kg) with each process from the original silicon steel product to domain refining. [ $B_8$  (T): (A) 1.93T, (B) 1.90T, (C) 1.87T]

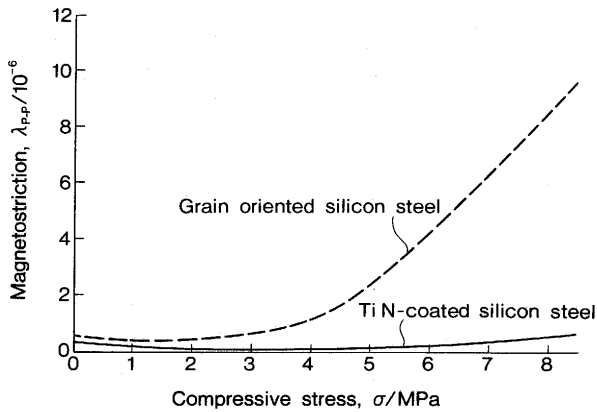


Fig. 5. Comparison of the compressive dependence of magnetostriction<sup>11)</sup> of grain oriented silicon steel and TiN-coated silicon steel sheet.

る。この場合実験に使用した珪素鋼板の磁束密度の高い試料ほど磁気特性の向上が顕著である。例えば、磁束密度が1.93Tの珪素鋼板において、初期の鉄損が $0.88\text{W/kg}$ で、HCD法によりTiN被覆した場合の最終の鉄損値が約38%向上した $0.55\text{W/kg}$ の超低鉄損を示すことが極めて注目される。また、Fig. 4の中でPVD (HCD法)とCVDによりTiNを被覆したときの鉄損の向上度( $\Delta W$ )はHCD法の鉄損向上がCVDより $0.01\sim 0.05\text{W/kg}$ 優れている。さらに、CVDの中でも、熱CVD法による鉄損の向上がプラズマCVD法より $0.01\sim 0.03\text{W/kg}$ 優れている。

Fig. 5<sup>11)</sup>はTiN被覆した一方向性珪素鋼板と現行の一方向性珪素鋼板の磁歪の圧縮応力特性を比較して示した一例である。Fig. 5から明らかなように、TiN被覆一方向性珪素鋼板では測定した圧縮応力範囲においては、磁歪 $\lambda_{p-p}$ が無応力時と殆ど変化がなく、現行の珪素鋼板に比較して格段に優れた磁歪の圧縮応力特性を示すのが注目される<sup>9)</sup>。これはTiN被覆によって珪素鋼板に高張力が付与されている為であると考えられる。通常、 $\lambda_{p-p}$ が $4\times 10^{-6}$ となる圧縮応力をもって珪素鋼板への張力付与の評価とすれば、TiN被覆した珪素鋼板には8MPa以上の張力が付与されていることを示している。すなわち、TiN被覆した珪素鋼板はフォルステライト下地被膜上に熱膨張係数の小さい絶縁被膜を施して珪素鋼板に引張張力を付加した現行の一方向性珪素鋼板よりも、2倍以上の強力な張力を付加することができることが注目される。

### 3・2 HCDコーティング条件の相違による磁気特性への影響

HCD法を用いて一方向性珪素鋼板にTiNを被覆する際のコーティング条件、(a)コーティング膜厚、(b)バイアス電圧、(c)コーティング温度、(d)張力、(e)真空度および(f)反応 $\text{N}_2$ ガスについて調査した。Fig. 6はTiNのコーティング膜厚について、コーティング前後の磁束密度差 $\Delta B_s$ (T)と鉄損差 $\Delta W_{17/50}$ (W/kg)の変化を示す。TiN被覆後においてFig. 6の中の $\Delta B_s$ (T)と $\Delta W_{17/50}$ (W/kg)は $\Delta B_s$ (T)の値が全て増加、

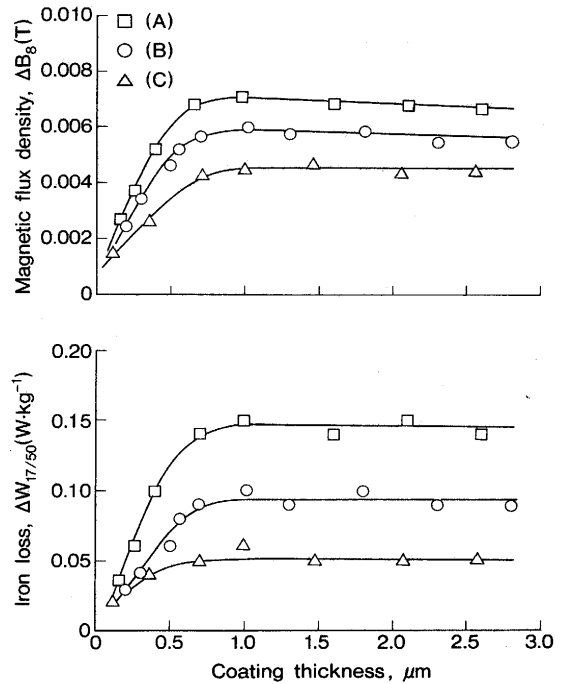


Fig. 6. Variation of the changes in magnetic flux density [ $\Delta B_s$ (T)] and in iron loss [ $\Delta W_{17/50}$ (W/kg)] before and after TiN ceramic coating with respect to the thickness of TiN film. [ $B_s$ (T): (A) 1.93T, (B) 1.90T, (C) 1.87T]

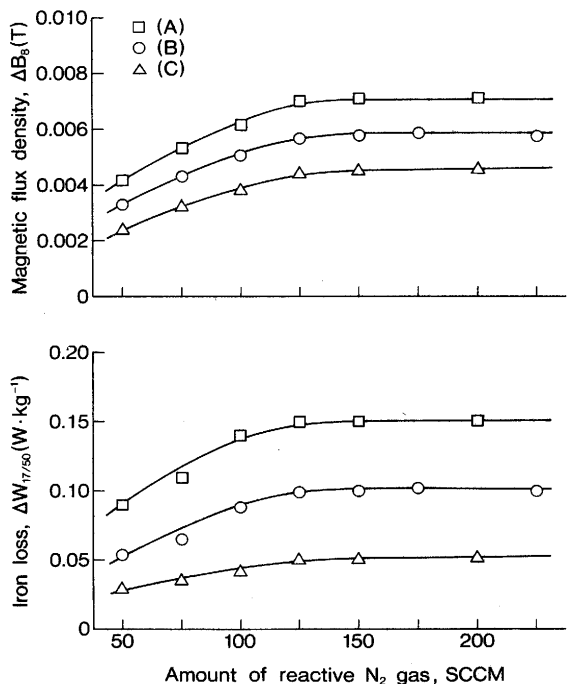


Fig. 7. Variation of the changes in magnetic flux density [ $\Delta B_s$ (T)] and in iron loss [ $\Delta W_{17/50}$ (W/kg)] before and after TiN ceramic coating with respect to the reactive  $\text{N}_2$  gas. [ $B_s$ (T): (A) 1.93T, (B) 1.90T, (C) 1.87T]

$\Delta W_{17/50}$ (W/kg)の値が全て減少を示した。Fig. 6からTiN被覆後の珪素鋼板の磁束密度差と鉄損差は共にTiNのコーティング膜厚が $0.7\mu\text{m}$ まで $\Delta B$ (T)と $\Delta W_{17/50}$ (W/kg)がコーティング膜厚に比例して改善されるが、 $0.7\mu\text{m}$ 以上では

改善の度合いは小さくなり1.0-1.5 $\mu\text{m}$ コーティング膜厚では飽和値を示す。このときの磁気特性の向上は用いた試料の磁束密度の高いものほど顕著である。〔例えば、Fig. 6の中で磁束密度差と鉄損差は共に(C)  $\Rightarrow$  (B)  $\Rightarrow$  (A)の試料の順に大きい。〕また、Fig. 7はTiNのコーティングの反応 $\text{N}_2$ ガスについて、コーティング前後の磁束密度差 $\Delta B_8$  (T)と鉄損差 $\Delta W_{17/50}$  (W/kg)の変化を示す。Fig. 7からTiN被覆後の珪素鋼板の磁束密度差と鉄損差は共にTiNのコーティングの反応 $\text{N}_2$ ガスは100SCCM<sup>†</sup>まで反応 $\text{N}_2$ ガス量に比例して磁束密度差と鉄損差が改善されるが、150SCCMではほぼ一定となる。この場合においてもTiN被覆珪素鋼板の磁気特性の向上は用いた試料の磁束密度の高いものほど顕著で、Fig. 7の中で磁束密度差と鉄損差は共に(C)  $\Rightarrow$  (B)  $\Rightarrow$  (A)の試料の順に大きい。

Fig. 8は(B)の試料の一方方向性珪素鋼板を使用して、TiNを被覆する際のコーティング条件、(a)コーティング膜厚、(b)バイアス電圧、(c)コーティング温度、(d)張力、(e)真空度および(f)反応 $\text{N}_2$ ガスについてTiN被覆前後の鉄損差を調査した実験結果を示したものである。なお、Fig. 8の中の(a)お

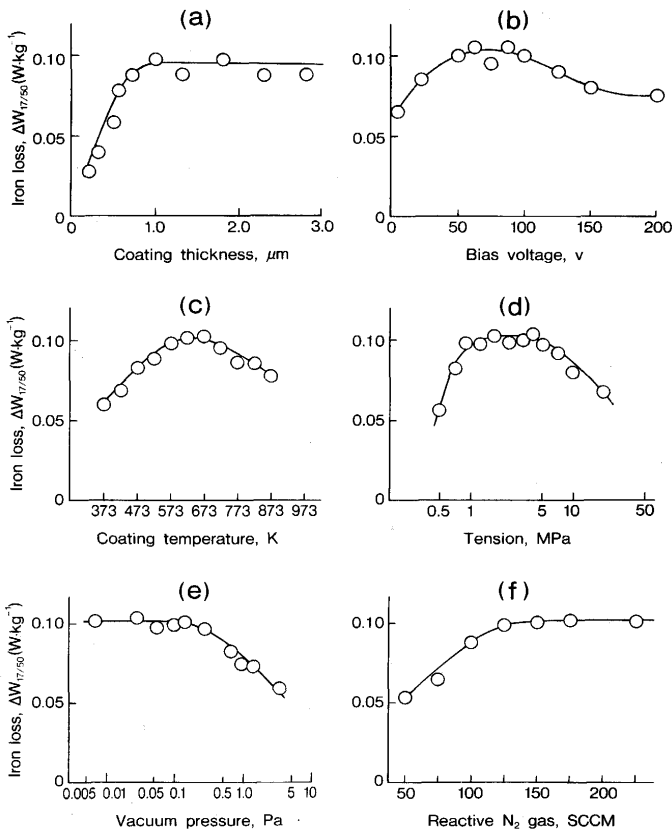


Fig. 8. Variation of the changes in iron loss [ $\Delta W_{17/50}$  (W/kg)] before and after TiN ceramic coating with respect to (a) thickness of TiN film, (b) bias voltage, (c) coating temperature, (d) tension, (e) vacuum pressure and (f) reactive  $\text{N}_2$  gas. [Samples of (B) 1.90T were used.]

よび(f)は、Fig. 6およびFig. 7の中の(B)試料の実験データと同じである。Fig. 8から明らかなように、一方向性珪素鋼板表面上にTiNを被覆する際の各コーティング条件には最適な範囲が存在する。すなわち、良好な鉄損を得るためには(a)のコーティング膜厚の場合、TiNの膜厚が0.7 $\mu\text{m}$ 以上、(b)のバイアス電圧の場合、-50Vから-100Vのバイアス電圧の範囲で、(c)のコーティング温度の場合、573Kから673Kのコーティング温度の範囲で、(d)の張力の場合、0.9MPaから5MPaの張力の範囲で、(e)の真空度の場合、0.3Pa以上の高真空度で、(f)の反応 $\text{N}_2$ ガスの場合、100SCCMまで反応 $\text{N}_2$ ガス量に比例して鉄損が向上するが、150SCCMではほぼ一定となる。このFig. 8の結果から、TiNの膜厚、バイアス電圧、コーティング温度、張力、真空度、反応 $\text{N}_2$ ガス量等によって、TiN被覆一方方向性珪素鋼板の磁気特性に大きな影響を与えることがわかる。

3.3 TiN被覆した一方方向性珪素鋼板の磁区構造

Fig. 9の磁区写真は(A)の試料の一方方向性珪素鋼板を使用して、この鋼板表面の絶縁被膜とフォルステライト下地被膜を除去し、次に示す処理を行った後電頭による磁区構造の直接観察を行ったものである。すなわち、まず最初に珪素鋼板の2次再結晶粒の結晶方位を背面ラウエ法で測定し、最適な結晶粒径と結晶方位を持つGoss方位2次再結晶粒を特別に選別した。その後、珪素鋼板表面を化学研磨した後、一個の大きなGoss方位2次再結晶粒中の半分をステンレス箔(約60 $\mu\text{m}$ 厚)で包み、Fig. 2中のHCD法を用いて珪素鋼板に張力を付加しながら、TiN被覆領域と被覆しない研磨のままの領域を作り出した後電頭による磁区の直接観察を行った。Fig. 9の磁区写真から、化学研磨領域では圧延方向に長く伸びた白色と黒色の大きな磁壁間隔を有する180°主磁区が交互に観察される。これに対して、TiNを被覆した領域では180°主磁区が極端に細分化している。特に、研磨領域とTiN被覆領域の境界では大きな磁壁間隔を有する180°主磁区が急激に4-6本の磁区に細分化している。また、この境界ではレンズ状の磁区構造および90°磁区構造が観察されるのが特徴である。

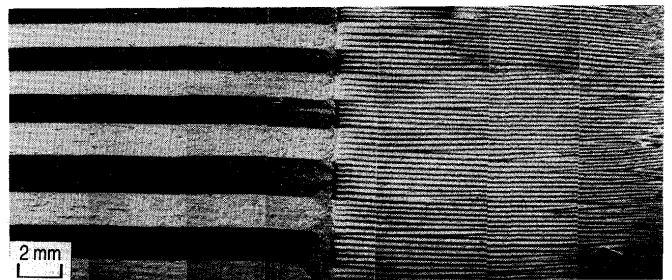


Fig. 9. Montage of domain structure of chemically polished and TiN-coated areas inside a single giant secondary Goss grain of silicon steel sheet.

<sup>†</sup> standard cubic centi meter per minuteです。

## 4. 考察

Fig. 1の模式図で示すフォルステライト下地被膜を有する現行の一方向性珪素鋼板の鉄損に影響する要因と改善方法がTable 1にまとめて示してある。Table 1と本実験の鉄損向上の関連においては、珪素鋼板の化学研磨による表面の平滑化と表面近傍の不純物除去によるヒステリシス損の向上に関連している。すなわち、現行の一方向性珪素鋼板では鋼板の表面とフォルステライト下地被膜の界面の凹凸が顕著であるため鉄損を向上させるには限界がある。また、渦電流損の向上要因では珪素鋼板表面近傍の鋼板への張力と磁区細分化が鉄損向上に関連している。すなわち、現行の一方向性珪素鋼板ではフォルステライト下地被膜の上に熱膨張係数の小さい絶縁被膜を施すことによって珪素鋼板への張力を付加して鉄損と磁歪を改善しているが、このフォルステライト下地被膜上からの鋼板への張力では限界がある。Fig. 5の磁歪の圧縮応力特性の測定結果から、TiN被覆した珪素鋼板では8MPa以上の引張張力が付与されていることが示されており、これによって渦電流損を顕著に向上させることが可能であると考えられる。特に、Fig. 9の一個の大きなGoss方位2次再結晶粒を用いた化学研磨領域とTiN被覆領域の磁区構造の比較から明らかなように、180°主磁区がTiN被覆によって4-6本の磁区に極端に細分化されることが指摘できる。なお、このような優れた磁気特性を得るためには、Fig. 6~Fig. 8に見られるようなHCDコーティング条件を最適範囲に制御することが重要である。

さらに磁区細分化処理はレーザー<sup>7)</sup>、プラズマ<sup>8)</sup>等の使用による人工粒界の導入によって鉄損を向上させる方法が採用されているが、フォルステライト下地被膜を有する現行の一方向性珪素鋼板では鋼板界面の凹凸のためこのような磁区細分化処理を施しても鉄損向上には限界がある。これに対して、Fig. 4のTiN被覆一方向性珪素鋼板の磁気特性、特に、鉄損が顕著に向上することを始めて明らかにした。すなわち、そのときの珪素鋼板の磁束密度は0.004~0.015 T程度の向上であるのに較べて、鉄損は0.11~0.23W/kgと大幅に向上することが注目される。しかも、この場合歪み取り焼鈍を施しても、磁気特性の劣化が起らないのが特徴であり、且つこれらのセラミック被膜は研磨された鋼板表面上に約1 $\mu$ m厚の薄膜であるため、現行のフォルステライト下地被膜を有する一方向性珪素鋼板に較べて占積率が良いと考えられる。

## 5. 結論

一方向性珪素鋼板の被膜除去後の鋼板表面を研磨により

平滑化した後、PVD (HCD法) を用いて鋼板表面上にTiNを被覆したときの磁気特性への影響、さらにHCD法を用いてTiN被覆する際のコーティング条件による珪素鋼板の磁気特性への影響を調査した結果、次のことが明らかとなった。

1) TiN被覆した一方向性珪素鋼板の磁束密度 $B_0$  (T)は0.004~0.015T程度の向上であるのに較べて、鉄損 $W_{17/50}$ は0.11~0.23W/kgと大幅に向上する。この場合磁束密度の高い珪素鋼板ほど顕著である。例えば、磁束密度が1.93T、鉄損が0.88W/kgの珪素鋼板において、磁区細分化処理まで施した最終の鉄損が約40%向上した0.55W/kgの超低鉄損値を示す。

2) セラミック被膜を有する珪素鋼板は歪み取り焼鈍を施しても特性が劣化しない。また、磁歪の圧縮応力特性も良く、且つ占積率も良い。

3) HCD法を用いて、珪素鋼板表面上にTiNを被覆する際、各コーティング条件には最適範囲が存在する。すなわち、良好な鉄損を得るためには、(a)TiNの膜厚が0.7 $\mu$ m以上、(b)-50Vから-100Vのバイアス電圧、(c)573Kから673Kのコーティング温度、(d)0.9MPaから5MPaの張力、(e)0.3 Pa以上の高真空度、(f)150SCCM以上の反応 $N_2$ ガス量である。

4) 一個の大きなGoss方位2次再結晶粒中で作成した化学研磨領域とTiN被覆領域の磁区構造の比較では、研磨領域の大きな磁壁間隔を持つ180°主磁区がTiN被覆により4-6本の磁区に細分化される。

## 文 献

- 1) 井口征夫：日本金属学会会報，27 (1988)，p.250
- 2) S. Taguchi, A. Sakakura, F. Matsumoto, K. Takashima and K. Kuroki: J.M.M.M., 2 (1976), p.121
- 3) 例えば、田口 悟：日本金属学会会報，13 (1974)，p.49
- 4) I. Goto, I. Matoba, T. Imanaka, T. Gotoh and T. Kan: Proc. Soft Magnetic Materials, 2 (1975), p.262
- 5) 田中 収, 山本孝明, 高田敏彦：特許公報，昭53-28375号
- 6) 嶋中 浩, 市田敏郎, 小林 繁：特許公報，昭56-52117号
- 7) T. Iuchi, S. Yamaguchi, T. Ichiyama, M. Nakamura and J. Ishimoto: J. Appl. Phys., 53 (1982), p.2410
- 8) B. Fukuda, K. Sato, T. Sugiyama, A. Honda and Y. Ito: Proc. of ASM Con. of Hard and Soft Magnetic Materials, 8 (1987), p.402
- 9) H. Kobayashi, E. Sasaki, M. Iwasaki and N. Takahashi: Proc. of Soft Magnetic Materials, 8 (1987), p.402
- 10) K. Sato, B. Fukuda and T. Kan: 11th Annual Con. IIT, U.S.A., (1992)
- 11) Y. Inokuti, K. Suzuki and Y. Kobayashi: Mater. Trans. JIM, 33 (1992), p.946
- 12) Y. Inokuti, K. Suzuki and Y. Kobayashi: Mater. Trans. JIM, 34 (1993), p.622
- 13) 井口征夫, 伊藤 庸：特許公報，昭63-54767号