

TiN 被覆極薄珪素鋼板のトロイダル鉄芯の鉄損と曲げによる磁区構造の観察

井口 征夫*

Iron Loss of Toroidal Core of TiN-coated Very Thin Grain Oriented Silicon Steel Sheets and Observation of Domain Structure by Bending

Yukio INOKUTI

Synopsis : In order to clarify the difference of iron loss of single sheet and toroidal core and domain structure of TiN-coated very thin silicon steel sheets, TiN coating by the hollow cathode discharge (HCD) method was performed on polished very thin (0.10 mm) silicon steel sheets. Iron loss of single sheets and toroidal cores after domain refining was measured. Also, domain structures of (011)[100] single crystals of silicon steel, which were chemical polished, TiN-coated and then domain refined by scribing with a knife at 4 mm widths perpendicular to the rolling direction, were observed by electron microscopy under (a) straight, (b) convex and (c) concave states.

0.10 mm TiN-coated very thin silicon steel showed ultra-low iron loss of $W_{13/50}=0.12$ W/kg with a single sheet measurement after the domain refining, whereas similar iron loss with a toroidal core showed minimum value of $W_{13/50}=0.12$ W/kg after 700°C annealing, being good value of building factor (B.F.) of 1.0.

The domain structures with (a) straight state obtained by TiN coating and inducement of a small local strain by scribing produced a drastic domain refinement, whereas that with (b) convex and (c) concave states showed further domain refinement. Also, the domain structure of (c) concave state could be observed after annealing above 873K.

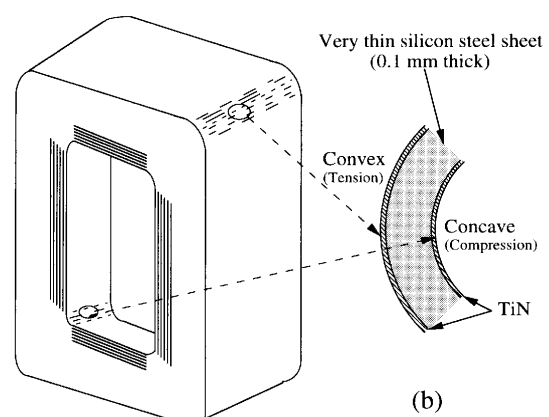
Key words: grain oriented silicon steel; ceramic film, ultra-low iron loss; TiN coating; hollow cathode discharge; very thin gauge; bending; amorphous alloy; toroidal core; building factor; magnetic domain.

1. 緒言

TiNを被覆した極薄の一方方向性珪素鋼板¹⁾は、230 μm 厚の一方方向性珪素鋼板を機械研磨と化学研磨により100 μm 程度まで薄くしたあと、イオンプレーティング(中空陰極放電, hollow cathode discharge (HCD)法を使用)によりTiNを被覆した珪素鋼板の磁気特性を調査し、アモルファス合金の磁気特性値²⁾や3次再結晶した極薄珪素鋼板の磁気特性値³⁾と比較検討した結果について報告した。すなわち、TiN被覆極薄珪素鋼板の磁区細分化後の磁気特性は、鉄損 $W_{13/50}$ が0.12 W/kgと極端に低減し、この鉄損値はアモルファス合金や3次再結晶した極薄珪素鋼板とほぼ同等であることを述べた。

通常珪素鋼板の素材をトランス用の鉄芯材料として使用する場合は、珪素鋼板の単板を測定した素材の鉄損値を基準にして使用される。しかし、珪素鋼板のような高機能材料においては、Fig. 1の模式図で示すように、最終のトランスに組み立てたときの鉄損値を示すトランス特性と珪素鋼板の素材の鉄損値の比で表示されるビルディングファクター(B.F.=トランス鉄損/素材鉄損)が小さいことも極めて重要である。

アモルファス合金の箔帯をトロイダル状に巻いて鉄芯を製造した場合には、箔帯の板厚が20~25 μm 程度と極薄であるため鉄芯の作成中に導入された歪みやトランスコーナー部の曲げ加工歪みによる磁性劣化が起こるのでB.F.



$$\text{Building Factor (B. F.)} = \frac{\text{Iron loss of transformer core}}{\text{Iron loss of silicon steel sheet}}$$

(a)

Fig. 1. Schematic diagram of wound core and building factor.

の値⁴⁾が大きくなることが懸念されている。

一方、TiN被覆極薄珪素鋼板を用いてトロイダル鉄芯を試作した場合においては、製品板厚が一方方向性珪素鋼板と比較して極端に薄いものの、アモルファス合金の箔帯と比較して、5倍程度の厚みを有している。このためこの珪素鋼板でトロイダル状の鉄芯を試作した場合には、曲げ加工歪みによる磁性劣化が起こってもその影響は無視出来る程度に小さいのではないかと考えられ、現行の一方方向性珪素鋼板のB.F. (積鉄芯のB.F.は、1.15~1.20、巻鉄芯のB.F.は0.98~1.00)並みの良好な値が得られるのではないかと予想される。

本報は、TiN被覆極薄珪素鋼板を用いてトロイダル鉄芯を試作したときの鉄損とビルディングファクターB.F.を測定するとともに、その際極薄珪素鋼板に凸状あるいは凹状に曲げた状態の磁区構造がどの様に変化するかについて観察した。

2. 実験方法

実験に用いた試料は、0.23 mm厚の一方方向性珪素鋼板の製品板 [この素材成分はC: 0.043 mass%, Si: 3.31 mass%, Mn: 0.072 mass%, Se: 0.019 mass%, Sb: 0.023 mass%, Mo: 0.012 mass%]であった。この製品板は30 mm×300 mmに切断し、その後1073Kで7.2 ksの歪み取り焼鈍後、SST (Single Sheet Tester, 単板試験機)で磁気特性を測定した。この実験においては、磁気特性が最良の試料 [磁束密度 $B_8(T)$ が1.93 T以上で、鉄損 $W_{17/50}(W/kg)$ が0.88~0.91 W/kg]を製品板から選んで使用した。

次に、こ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)中に浸漬してフォステライト下地被膜を除去した。その後3% HFとH₂O₂液中で化学研磨を行って珪素鋼板を平滑化した。

一方、磁区観察用の試料は、(011)[100]方位に理想的に集積した単結晶試料を用いた。すなわち、あらかじめ珪素鋼板中に成長した大きな2次再結晶粒を全自動単結晶方位測定装置⁵⁾を使用して、その結晶方位が(011)面方位からの角度のずれがND<1°以内、[100]軸方位からの角度のずれがRD<1°以内で、かつそのときの2次再結晶粒の粒径が20~30 μmに大きく成長した(011)[100]方位の2次再結晶粒のみを選別して単結晶試料として用いた。また、一方方向性珪素鋼板に特有の大きな結晶粒の方位の表示方法⁶⁾では、 α , β , γ のいずれもの角度が(011)[100]方位から1°以内の2次再結晶粒を選別して用いたものである。

その後、これらの一方方向性珪素鋼板および(011)[100]方位の珪素鋼単結晶の表面は、機械研磨と3% HFと97% H₂O₂で化学研磨の組み合わせにより表面を平滑化するとともに0.1 mmの極薄の板厚に仕上げた。なお、化学研磨後の試料表面は、平滑で光沢のため2次再結晶粒を判別する

ことは不可能となるため、化学研磨の前には、(011)[100]方位の珪素鋼単結晶粒の形状を記憶して置く必要がある。

化学研磨後の極薄の一方方向性珪素鋼板および(011)[100]方位の珪素鋼単結晶の表面上へのTiN被覆は、HCD装置を用いて行った。このHCD装置は、イオン化率の高い(43%)低電圧(40V)・大電流(500A)の特性を有するプラズマ電子ビームを用いてコーティングを行うのが特徴である。これらの珪素鋼試料のTiNコーティングの方法は、TiNを被覆した極薄の一方方向性珪素鋼板¹⁾と同じ方法で行った。すなわち、HCD法によるイオンプレーティング処理は、投入パワー: 20 kW, 集束コイルパワー: 1.5 kW, 操作圧力: 0.093 Pa, バイアス電圧: -100 V, 基板温度: 673K, 成膜速度: 約0.1 μm/minで行った。なお、このときのコーティング後のTiNの膜厚は、約0.7 μmで膜厚測定計を用いて測定した。さらに、これら珪素鋼板試料のTiNコーティングの際には、張力付与が可能な治具¹⁾を用いてコーティングを行った。この治具の使用により、コーティング中の珪素鋼板の変形が防止でき、また最適の張力付与(通常の張力は3.5 MPa)により磁気特性を安定して再現性良く調査できるのが特徴である。

TiNコーティング前後の珪素鋼板の試料は、磁気特性を測定した。なお、本実験のTiN被覆極薄(0.1 mm厚)珪素鋼板の試料は、製品板厚が薄いために通常の珪素鋼板の単板のエプスタイン測定装置での磁気特性の自動測定が不可能である。このためアモルファス合金箔帯試料測定用の単板磁気特性装置を用いた。この場合、アモルファス箔帯試料との磁気特性レベルを直接比較するため、 $W_{13/50}(W/kg)$ の鉄損の特性値を測定した。さらに、TiN被覆極薄珪素鋼板の磁区細分化処理は、圧延方向に直角方向に4 mm間隔でナイフで微小歪みを導入した後、再び磁気特性を測定した。

TiN被覆極薄珪素鋼板のトロイダル鉄芯用の試料作製は、アモルファス合金のトロイダル鉄芯⁴⁾と同じ方法で行い、トロイダル磁気測定装置もアモルファス合金で使用したのと同じ装置で測定した。すなわち、本実験のトロイダル鉄芯の磁気特性値とアモルファス合金のトロイダル鉄芯の磁気特性値を直接比較検討するために、コアの直径を60 mmとした。また、TiN被覆極薄珪素鋼板のトロイダル鉄芯の作成後は、673~1173Kで3% H₂+Ar中で7.2 ksの等時間焼鈍処理を行った後で鉄損を測定した。

さらに、(011)[100]方位の珪素鋼単結晶に化学研磨、同様のTiN被覆およびその後の磁区細分化処理した珪素鋼試料の磁区観察は電子顕微鏡(H-700)を用いて、加速電圧: 200 kV, 電流: 25 μAで行った。この磁区観察は、既に報告¹⁾と同じ方法で観察した。すなわち、磁区観察用試料は、入射電子ビームに対して45°に傾け【例えば、具体的観察例として、Fig. 2の(a)は、30 mm×50 mmのTiN被覆極薄珪素鋼板の単板試料を銅板にはりつけた状況を模式的に示

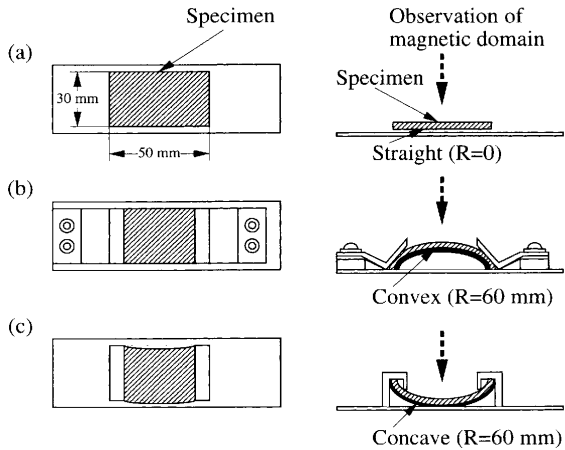


Fig. 2. Schematic diagram of (a) straight, (b) convex and (c) concave states for domain observation.

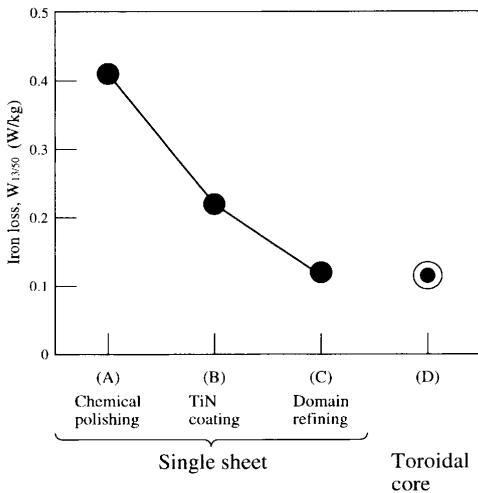


Fig. 3. Change of iron loss [$W_{13/50}$ (W/kg)] of single sheet of silicon steel from (A) chemical polishing via (B) TiN coating to (C) domain refining, that of (D) toroidal core. [Iron loss of (D) shows minimum value measured after annealing treatment.]

す。この中の30mmサイズの方は、試料の幅方向で電子ビームに対して45°傾斜させ、一方50mmサイズの方は、試料の長手方向、すなわち試料の[100]軸の圧延方向で電子ビームに対して直角にセットできる治具を用いて観察したものである。】、検出器を左側の水平方向に配置して磁区観察を行った。

Fig. 2の(b)および(c)は、磁区観察の曲げ加工の状況を模式的に示したものである。Fig. 2の(a)に示すように単板試料での化学研磨、TiN被覆および磁区細分化後の磁区観察した後、同じ試料を用いてFig. 2の(b)の模式図で示すように $R=60$ mmの凸状に曲げた状態で磁区を直接観察した。さらに、その後同じ試料を用いてFig. 2の(c)の模式図で示すように $R=60$ mmの凹状に曲げた状態で磁区を直接観察した。これらの治具はアモルファス合金の磁区観察に使用した治具⁴⁾と同一のものを使用した。

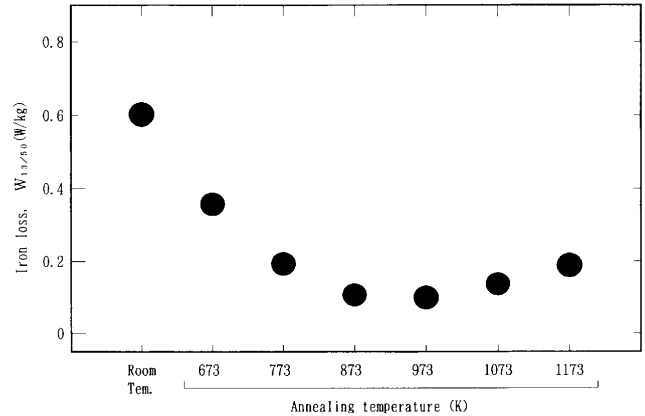


Fig. 4. Change of iron loss of toroidal core measured after isochronal annealing at interval of 100 deg. in 3% $H_2 + N_2$ gas from 673 to 1173K for 7.2 ks.

3. 実験結果

Fig. 3は、TiNを被覆した極薄珪素鋼板【板厚：0.1mm】の(A)化学研磨後、(B)TiN被覆後および(C)磁区細分化の単板の鉄損特性と(D)トロイダル鉄芯の鉄損特性【 $W_{13/50}$ (W/kg)】の変化を纏めて示す。図中の(A)、(B)および(C)の単板の鉄損値は同一の珪素鋼板を用いてのエプスタインの平均値の変化を示したもので、(D)のトロイダル鉄芯の鉄損値は、(C)の磁区細分化したエプスタイン試料を用いたものである。なお、(D)のトロイダル鉄芯の鉄損値は、Fig. 4から明らかなようにトロイダル鉄芯作成後、673~1173Kで3% $H_2 + Ar$ 中で7.6ksの等時間の焼鈍処理において、973Kで焼鈍したときの最も低減した鉄損値をプロットして示したものである。

Fig. 3から、(A)の化学研磨後の単板の鉄損 $W_{13/50}$ が0.42 W/kg、(B)のTiN被覆後の単板の鉄損 $W_{13/50}$ が0.22 W/kg、(C)磁区細分化後の単板の鉄損 $W_{13/50}$ が0.12 W/kgである。これらの単板の鉄損変化は、TiNを被覆した極薄の一方方向性珪素鋼板¹⁾の結果と±5%以内で一致する。次の(D)のトロイダル鉄芯の鉄損は、トロイダルに作製した場合に最も高い値を示すが、高温焼鈍処理と共に鉄損が低減し、973Kで最も低減し $W_{13/50}$ で0.12 W/kgを示した。この場合のトロイダル鉄芯の鉄損値を用いるとビルディングファクターB.F.が1.0となる。この値は、アモルファス合金の箔帯を使用したときのB.F.値(1.7~3.1)⁴⁾に比較して極めて良いことがわかる。一方方向性珪素鋼板の巻き鉄芯のB.F.値(0.97~0.99)と同程度か若干悪い程度であり、0.1mm厚の極薄珪素鋼板を用いたにも係わらず、0.20~0.30mmの厚の一方方向性珪素鋼板と同レベルであることが注目される。

Fig. 5は、(011)[100]方位の珪素鋼単結晶の(A)化学研磨、(B)TiNコーティングおよび(C)磁区細分化後の¹⁾水平状態の磁区構造の観察写真を示す。この場合の磁区観察の際の試料のセットは、Fig. 2の(a)の方法で行ったものである。

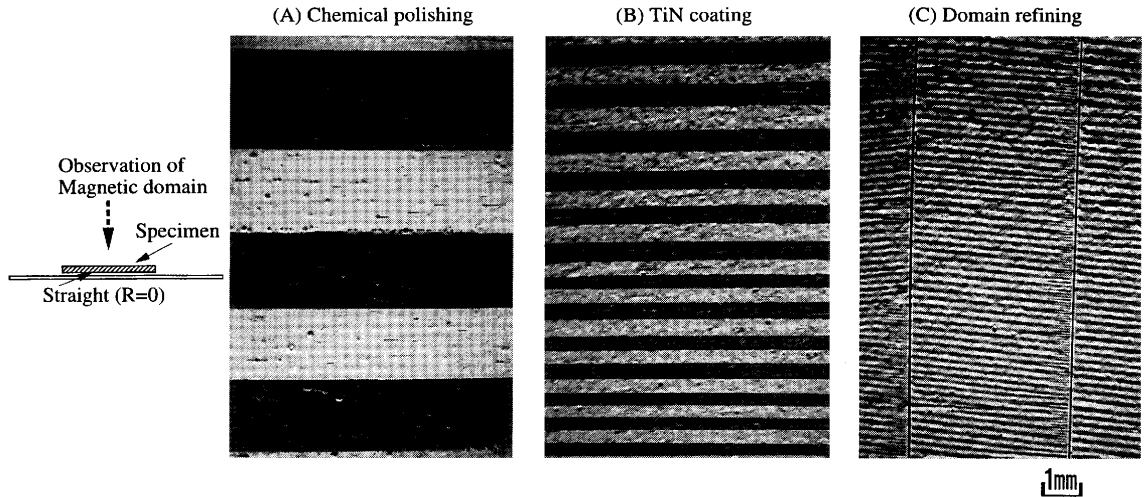


Fig. 5. Domain structures of (a) straight state under (A) chemical polishing, (B) TiN coating and (C) domain refining of very thin (011)[100] single crystal of silicon steel before annealing.

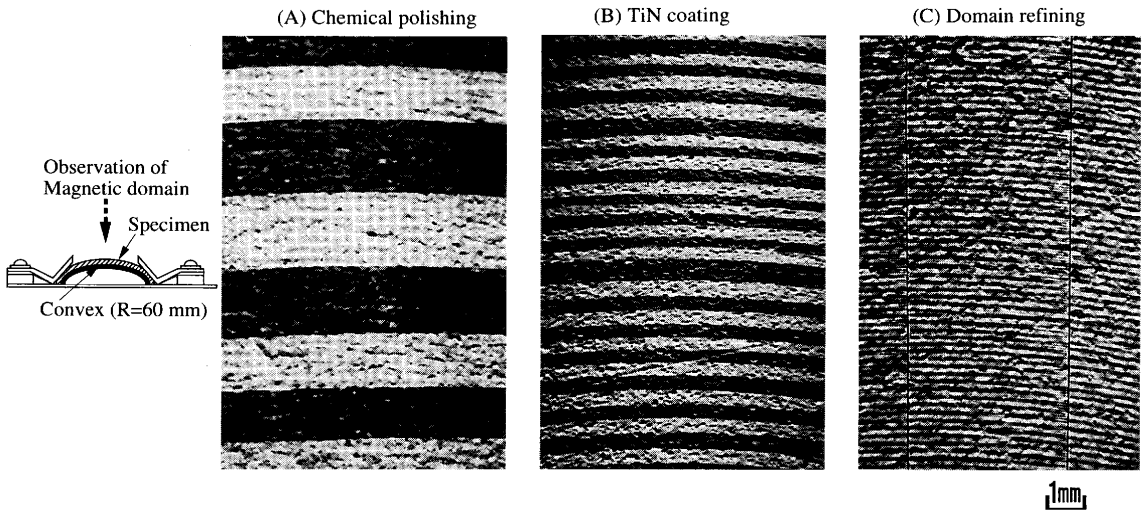


Fig. 6. Domain structures of (b) convex state under (A) chemical polishing, (B) TiN coating and (C) domain refining of very thin (011)[100] single crystal of silicon steel before annealing.

また、Fig. 6 は、(011)[100] 方位の珪素鋼単結晶の凸状に曲げたときの同様の磁区構造（この場合の磁区観察の際の試料のセットは、Fig. 2 の (b) の方法で行ったものである。）、さらに Fig. 7 は、凹状に曲げたときの同様の磁区構造の観察写真（この場合の磁区観察の際の試料のセットは、Fig. 2 の (c) の方法で行ったものである。）を示す。

まず、Fig. 5 の (A) の化学研磨後の水平状態では、白色と黒色の交互に圧延方向に長く伸びた極端に大きな磁壁間隔 (1.8~2.4mm) を持つ 180° 主磁区が観察される。(B) の TiN 被覆後の水平状態では、極端に磁区が細分化される。さらに、(C) の磁区細分化後の水平状態では、TiN コーティング後の 180° 主磁区が、歪み導入によりさらに細分化されると同時に、歪みを導入した 0.2~0.7mm の領域においては、180° 主磁区が二つに細分化 (180° supplementary domain) される。

次の Fig. 6 の凸状に曲げた状態および Fig. 7 の凹状に曲げた

状態では (A)、(B) および (C) の処理において、それぞれの方向に 180° 主磁区はカーブしていることがわかる。これら 180° 主磁区のカーブは、Fig. 2 の (b) および (c) の模式図から明らかなように、試料の変形によるものである。すなわち、Fig. 6 の凸状に曲げた状態では、180° 主磁区が左側の試料の磁区観察の模式図と同じ方向に中央部が凸の状態にカーブしている。これに対して、Fig. 7 の凹状に曲げた状態では、180° 主磁区が左側の試料の磁区観察の模式図と同じ方向に中央部が凹の状態にカーブしている。

Fig. 6 の凸状に曲げた状態では、水平状態と同様そのまま磁区パターンを直接観察することが可能であった。しかしながら、Fig. 7 の凹状に曲げた状態では、圧縮変形による大きな歪みのため磁区パターンが全く出現しなく、磁区パターンを直接観察することが不可能であった。このため、φ60mm の石英管に試料を曲げた状態で、3%H₂+Ar 中で焼鈍を行った結果、化学研磨処理では、973K で 7.6 ks の

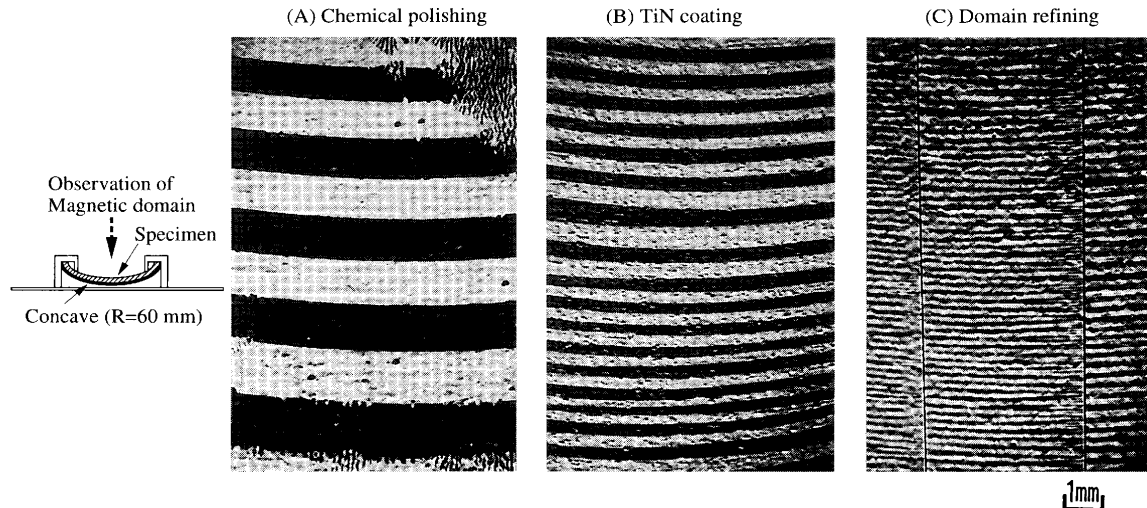


Fig. 7. Domain structures of (c) concave state under (A) chemical polishing, (B) TiN coating and (C) domain refining of very thin (011)[100] single crystal of silicon steel. (A) shows domain structures after annealing in flowing 3% H_2 +Ar gas for 7.6 ks at 973K, and (B) and (C) show that doe 7.6 ks at 873K.

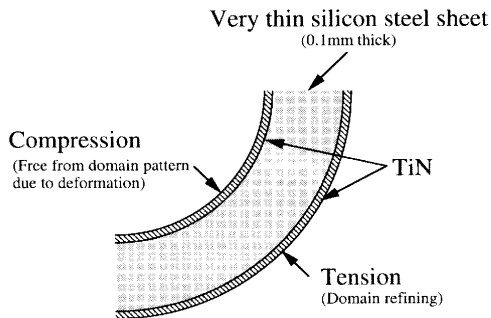


Fig. 8. Schematic diagram showing difference of domain patterns observed under room temperature in convex and concave sides.

焼鈍後において、TiN被覆後では、873Kで7.6ksの焼鈍後において、磁区パターンを観察することが可能となったものである。凹状に曲げた状態と凸状に曲げた状態では、化学研磨、TiN被覆および磁区細分化処理共に同じ傾向の磁区構造を示す。しかしながら、873Kで7.6ksの焼鈍後の凹状に曲げた状態の磁区細分化後においては、歪みを導入した0.2~0.7mmの領域においては、180°主磁区が二つに細分化(180° supplementary domain)されることが注目される。

4. 考察

Fig. 8は、常温での凹状に曲げた側と凸状に曲げた側から直接観察した磁区構造の相違を模式図で比較して示したものである。本磁区観察において、凸状に曲げた場合には水平状態と同様そのまま磁区パターンを直接観察することが可能であった。しかしながら、Fig. 7の凹状に曲げた状態では、圧縮変形による大きな歪みのため磁区パターンが全く出現しなく、磁区パターンを直接観察することが不可能であったことが指摘される。すなわち、凹状に曲げた

側は、凸状に曲げた側の引張変形よりも圧縮変形による歪みの付加が大きいために磁区構造の観察が不可能であったと考えられる。873K以上の焼鈍においてのみ磁区パターンが観察されることから、この考えを支持している。また、焼鈍による歪みの開放は、TiN被覆の方が化学研磨した状態よりも約100°程度低温で起こることが興味深い。これは、TiN被覆により珪素鋼板表面近傍に張力が付与されているために珪素鋼板表面近傍の歪みの開放が化学研磨した場合よりもより早く低温で起こったためと考えられる。

トロイダル鉄芯に組み上げた場合には、本実験の凹状に曲げた領域の圧縮変形による歪みによる鉄損の劣化が懸念されるもののTiN被覆極薄珪素鋼板は、高温の歪取り焼鈍による鉄損低減が可能であるため、B.F.はアモルファス合金の箔帯と比較してより鉄損を低減することが出来る。

5. 結言

TiNを被覆した極薄珪素鋼板(0.1mm厚)を用いてトロイダル鉄芯を試作してB.F.を測定した。また、トロイダル鉄芯を試作したときに導入される曲げ加工歪みによる磁区構造の変化を観察した。その結果、次のことが明らかとなった。

(1) TiNを被覆した極薄珪素鋼板(0.1mm厚)の単板測定による素材の鉄損は、磁区細分化後で $W_{13/50}$ が0.12W/kgであった。

(2) その後この極薄珪素鋼板を用いてトロイダル鉄芯を試作した。その後973Kの歪取り焼鈍処理したときの最も低減した鉄損は、 $W_{13/50}$ が0.12W/kgであった。

(3) このときのビルディングファクター(B.F.=トランス鉄損/素材鉄損)は、1.00と極めて良い値を示した。

(4) 電頭による磁区構造の直接観察において、TiN被

覆後の磁区細分化したときの水平状態では、さらに180°主磁区が細分化されるとともに、歪み導入した近傍の0.2~0.7mmの領域において、磁区はさらに二つに細分化した。

(5) 凸状の曲げた状態での磁区は、そのままの状態では磁区パターンを観察できなかった。しかしながら、凹状に曲げたときの磁区は、そのままの状態では磁区パターンを観察できず、873K以上の焼鈍が必要であった。

文 献

- 1) Y.Inokuti: *J. Jpn. Inst. Met.*, **63** (1999), 361.
- 2) Y.Sato and S.Sato: *Bull. Jpn. Inst. Met.*, **33** (1994), 175.
- 3) K.Arai and K.Ishiyama: *Bull. Jpn. Inst. Met.*, **31** (1992), 429.
- 4) N.Siga, F.Kogiku, S.Okabe and N.Morito: *Mater. Trans., JIM.*, **39** (1998), 596.
- 5) M.Katayama, J.Shimomura, H.Yamashita, T.Kikuchi and Y.Inako: *Bull. Jpn. Inst. Met.*, **33** (1994), 625.
- 6) T.Nozawa, T.Yamamoto, Y.Matsuo and Y.Ohya: *IEEE Trans. Mag.*, **14** (1978), 972.