

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第6896944号  
(P6896944)

(45) 発行日 令和3年6月30日(2021.6.30)

(24) 登録日 令和3年6月11日(2021.6.11)

(51) Int.Cl.		F I	
<b>C09J</b>	<b>1/00</b>	<b>(2006.01)</b>	C09J 1/00
<b>C09J</b>	<b>11/04</b>	<b>(2006.01)</b>	C09J 11/04
<b>C09J</b>	<b>11/06</b>	<b>(2006.01)</b>	C09J 11/06
<b>C09J</b>	<b>5/06</b>	<b>(2006.01)</b>	C09J 5/06
<b>B32B</b>	<b>15/08</b>	<b>(2006.01)</b>	B32B 15/08
N			
請求項の数 18 (全 14 頁) 最終頁に続く			

(21) 出願番号	特願2020-536091 (P2020-536091)	(73) 特許権者	592000691
(86) (22) 出願日	平成30年12月17日(2018.12.17)		ポスコ
(65) 公表番号	特表2021-509925 (P2021-509925A)		POSCO
(43) 公表日	令和3年4月8日(2021.4.8)		大韓民国 キョンサンブクード ポハン-
(86) 国際出願番号	PCT/KR2018/016043		シ ナム-グ ドンヘアン-ロ 6261
(87) 国際公開番号	W02019/132365		(コエドン-ドン)
(87) 国際公開日	令和1年7月4日(2019.7.4)	(74) 代理人	110000051
審査請求日	令和2年6月26日(2020.6.26)		特許業務法人共生国際特許事務所
(31) 優先権主張番号	10-2017-0179925	(72) 発明者	キム, ジョン-ウ
(32) 優先日	平成29年12月26日(2017.12.26)		大韓民国 37859 キョンサンブク-
(33) 優先権主張国・地域又は機関	韓国 (KR)		ド ポハン-シ ナム-グ, ドンヘアン-
			ロ, 6261 (コエドン-ドン), ポスコ
			内
			最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 電磁鋼板接着コーティング組成物、電磁鋼板積層体および電磁鋼板製品の製造方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

全体固形分100重量%を基準として、  
有機樹脂および有機樹脂に無機ナノ粒子が置換された有/無機複合体を含む第1組成物15~70重量%と、  
金属リン酸塩およびリン酸を含む第2組成物20~80重量%と、  
カップリング剤1~10重量%とを含み、  
前記カップリング剤は、シラン系カップリング剤、チタン酸塩系カップリング剤、およびアルミン酸塩系カップリング剤のうちの1種以上を含む電磁鋼板接着コーティング組成物。

【請求項2】

前記シラン系カップリング剤は、ジメチルジクロロシラン、メチルジクロロシラン、メチルトリクロロシラン、フェニルトリクロロシラン、トリクロロシラン、トリメチルクロロシラン、シリコンテトラクロライド、およびビニルトリクロロシランのうちの1種以上を含む請求項1に記載の電磁鋼板接着コーティング組成物。

【請求項3】

前記チタン酸塩系カップリング剤は、チタントリイソステアロイルイソプロポキシド、イソプロピルトリ(ジオクチルリン酸塩)チタン酸塩、イソプロピルトリオレイルチタン酸塩、チタントリス(ドデシルベンゼンスルホン酸塩)イソプロポキシド、イソプロピルトリ(ジオクチルピロリン酸塩)チタン酸塩、ジ(ジオクチルピロホスファート)エチレ

ンチタン酸塩、およびテトライソプロピルジ（ジオクチルリン酸塩）チタン酸塩のうちの1種以上を含む請求項1又は2に記載の電磁鋼板接着コーティング組成物。

【請求項4】

前記アルミン酸塩系カップリング剤は、アルミニウムチタン複合物、ビス（エチルアセト酢酸塩）アルミニウムジイソプロピル、ビス（アセチル酢酸塩）アルミニウムジイソプロピル、酢酸アルミニウムカップリング剤、イソプロピルエステルステアロイルオキシアルミニウム、およびイソプロピルエステルステアロイルオキシアルミニウムのうちの1種以上を含む請求項1乃至3のいずれか1項に記載の電磁鋼板接着コーティング組成物。

【請求項5】

前記有機樹脂は、ベンゼン、トルエン、キシレン、ナフタレン、アントラセン、およびベンゾピレンのうちから選択される1種以上を作用基として含む請求項1乃至4のいずれか1項に記載の電磁鋼板接着コーティング組成物。

10

【請求項6】

前記有機樹脂は、エポキシ系樹脂、エステル系樹脂、アクリル系樹脂、スチレン系樹脂、ウレタン系樹脂、およびエチレン系樹脂のうちから選択される1種以上を含む請求項1乃至5のいずれか1項に記載の電磁鋼板接着コーティング組成物。

【請求項7】

前記有機樹脂は、重量平均分子量が1,000～100,000であり、軟化点（T<sub>g</sub>）が30～150である請求項1乃至6のいずれか1項に記載の電磁鋼板接着コーティング組成物。

20

【請求項8】

前記無機ナノ粒子は、SiO<sub>2</sub>、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、TiO<sub>2</sub>、MgO、ZnO、CaO、およびZrO<sub>2</sub>のうちの1種以上を含む請求項1乃至7のいずれか1項に記載の電磁鋼板接着コーティング組成物。

【請求項9】

前記無機ナノ粒子は、前記有/無機複合体内に10～50重量%置換された、請求項1乃至8のいずれか1項に記載の電磁鋼板接着コーティング組成物。

【請求項10】

前記金属リン酸塩は、第1リン酸アルミニウム（Al（H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>）<sub>3</sub>）、第1リン酸コバルト（Co（H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>）<sub>2</sub>）、第1リン酸カルシウム（Ca（H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>）<sub>2</sub>）、第1リン酸亜鉛（Zn（H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>）<sub>2</sub>）、および第1リン酸マグネシウム（Mg（H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>）<sub>2</sub>）のうちの1種以上を含む請求項1乃至9のいずれか1項に記載の電磁鋼板接着コーティング組成物。

30

【請求項11】

複数の電磁鋼板と、

前記複数の電磁鋼板の間に位置する熱融着層とを含み、

前記熱融着層は、有機樹脂および有機樹脂に無機ナノ粒子が置換された有/無機複合体を含む第1組成物15～70重量%と金属リン酸塩およびリン酸を含む第2組成物20～80重量%と、カップリング剤1～10重量%とを含み、

前記カップリング剤は、シラン系カップリング剤、チタン酸塩系カップリング剤、およびアルミン酸塩系カップリング剤のうちの1種以上を含む電磁鋼板積層体。

40

【請求項12】

請求項1乃至10のいずれか1項に記載の接着コーティング組成物を準備する段階と、

前記接着コーティング組成物を電磁鋼板の表面にコーティングした後、硬化して接着コーティング層を形成する段階と、

前記接着コーティング層が形成された複数の電磁鋼板を積層し、熱融着して熱融着層を形成する段階と、

熱融着された電磁鋼板積層体を応力除去焼鈍して、接着層を形成する段階とを含む電磁鋼板製品の製造方法。

【請求項13】

50

前記接着コーティング層を形成する段階は、  
200～600の温度範囲で行われる請求項12に記載の電磁鋼板製品の製造方法。

【請求項14】

前記熱融着層を形成する段階は、  
150～300の温度、0.5～5.0MPaの圧力、および0.1～120分の加圧条件で熱融着する請求項12又は13に記載の電磁鋼板製品の製造方法。

【請求項15】

前記熱融着層を形成する段階は、  
昇温段階および融着段階を含み、昇温段階の昇温速度は10 /分～1000 /分である請求項12乃至14のいずれか1項に記載の電磁鋼板製品の製造方法。

10

【請求項16】

前記接着層を形成する段階は、500～900の温度で30～180分間行われる請求項12乃至15のいずれか1項に記載の電磁鋼板製品の製造方法。

【請求項17】

前記接着層を形成する段階は、変性気体または窒素(N<sub>2</sub>)気体雰囲気で行われる請求項12乃至16のいずれか1項に記載の電磁鋼板製品の製造方法。

【請求項18】

前記接着層を形成する段階は、液化天然ガス(LNG)10～30体積%および空気70～90体積%を含む変性気体雰囲気で行われる請求項12乃至17のいずれか1項に記載の電磁鋼板製品の製造方法。

20

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、電磁鋼板接着コーティング組成物、電磁鋼板積層体および電磁鋼板製品の製造方法に関する。具体的に電磁鋼板接着コーティング組成物の成分および電磁鋼板の間に形成される接着層の成分を制御して、電磁鋼板間の接着力を向上させた電磁鋼板接着コーティング組成物、および電磁鋼板製品の製造方法に関する。

【背景技術】

【0002】

無方向性電磁鋼板は、圧延板上の全ての方向に磁気的特性が均一な鋼板であって、モータ、発電機の鉄心、電動機、小型変圧機などに広く使用されている。

電磁鋼板は、打抜加工後に磁気的特性の向上のために応力除去焼鈍(SRA)を実施しなければならないものと、応力除去焼鈍による磁気的特性効果より熱処理による経費損失が大きい場合に応力除去焼鈍を省略する2種類の形態に区分される。

30

【0003】

絶縁被膜は、モータ、発電機の鉄心、電動機、小型変圧機など製品の仕上げ製造工程でコーティングされる被膜であって、通常渦電流の発生を抑制させる電気的特性が要求される。その他にも連続打抜加工性、耐粘着性および表面密着性などが要求される。連続打抜加工性とは、所定の形状に打抜加工後に複数を積層して鉄心で作る時、金型の摩耗を抑制する能力を意味する。耐粘着性とは、鋼板の加工応力を除去して磁気的特性を回復させる応力除去焼鈍過程後に鉄心鋼板間に密着しない能力を意味する。

40

【0004】

このような基本的な特性以外に、コーティング溶液の優れた塗布作業性と、配合後長時間使用可能な溶液安定性なども要求される。このような絶縁被膜は、溶接、クランピング、インターロッキングなど別途の締結方法を使用してこそ電磁鋼板製品として製造が可能である。

【0005】

反面、溶接、クランピング、インターロッキングなど既存の締結方法を使用せずに電磁鋼板表面に塗布されている接着溶液の熱融着により締結させようとする試みがある。この

50

ような目的で開発された接着コーティングは、主要成分が有機物から構成されている。

しかし、有機系接着コーティング組成物は、応力除去焼鈍工程時、有機物は高温で分解されるため、表面特性（絶縁、密着、耐蝕など）が劣位になるだけでなく、各電磁鋼板の個別枚間の接着力（締結力）もほとんど消失するようになる。

【0006】

また、従前、熱可塑性樹脂と低融点無機成分から構成された絶縁被膜組成物が知られている。低融点無機成分として、低融点ガラスフリット、水ガラス、あるいはこれらにコロイダルシリカを例示した。しかし、低融点ガラスフリットおよび水ガラスは、熱可塑性樹脂との相溶性が劣位にあるだけでなく、応力除去焼鈍処理工程後に樹脂の分解によりボンディング力が急速に低下するという問題があった。

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

本発明の一実施例では、溶接、クランピング、インターロッキングなど既存の締結方法を使用せずに、電磁鋼板を接着（締結）することができる接着コーティング組成物、これを適用した電磁鋼板積層体および電磁鋼板製品の製造方法を提供する。

本発明の一実施例では、応力除去焼鈍工程後にもボンディング力を維持することができる接着コーティング組成物、これを適用した電磁鋼板積層体、およびその製造方法を提供する。

【課題を解決するための手段】

【0008】

本発明の一実施例による電磁鋼板接着コーティング組成物は、全体固形分100重量%を基準として、有機樹脂および有機樹脂に無機ナノ粒子が置換された有/無機複合体を含む第1組成物15~70重量%と、金属リン酸塩およびリン酸を含む第2組成物20~80重量%およびカップリング剤1~10重量%とを含む。

カップリング剤は、シラン系カップリング剤、チタン酸塩系カップリング剤、およびアルミン酸塩系カップリング剤のうちの1種以上を含むことができる。

【0009】

シラン系カップリング剤は、ジメチルジクロロシラン、メチルジクロロシラン、メチルトリクロロシラン、フェニルトリクロロシラン、トリクロロシラン、トリメチルクロロシラン、シリコンテトラクロライド、およびビニルトリクロロシランのうちの1種以上を含むことができる。

【0010】

チタン酸塩系カップリング剤は、チタントリイソステアロイルイソプロポキシド、イソプロピルトリ（ジオクチルリン酸塩）チタン酸塩、イソプロピルトリオレイルチタン酸塩、チタントリス（ドデシルベンゼンスルホン酸塩）イソプロポキシド、イソプロピルトリ（ジオクチルピロリン酸塩）チタン酸塩、ジ（ジオクチルピロホスファート）エチレンチタン酸塩、およびテトライソプロピルジ（ジオクチルリン酸塩）チタン酸塩のうちの1種以上を含むことができる。

【0011】

アルミン酸塩系カップリング剤は、アルミニウムチタン複合物、ビス（エチルアセト酢酸塩）アルミニウムジイソプロピル、ビス（アセチル酢酸塩）アルミニウムジイソプロピル、酢酸アルミニウムカップリング剤、イソプロピルエステルステアロイルオキシアルミニウム、およびイソプロピルエステルイステアロイルオキシアルミニウムのうちの1種以上を含むことができる。

有機樹脂は、ベンゼン、トルエン、キシレン、ナフタレン、アントラセン、およびベンゾピレンのうちから選択される1種以上を作用基として含むことができる。

【0012】

有機樹脂は、エポキシ系樹脂、エステル系樹脂、アクリル系樹脂、スチレン系樹脂、ウレタン系樹脂、およびエチレン系樹脂のうちから選択される1種以上を含むことができる

10

20

30

40

50

。有機樹脂は、重量平均分子量が1,000~100,000であり、軟化点(T<sub>g</sub>)が30~150であってよい。

【0013】

無機ナノ粒子は、SiO<sub>2</sub>、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、TiO<sub>2</sub>、MgO、ZnO、CaO、およびZrO<sub>2</sub>のうちの1種以上を含むことができる。

無機ナノ粒子は、前記有/無機複合体内に10~50重量%置換されてもよい。

金属リン酸塩は、第1リン酸アルミニウム(Al(H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>)、第1リン酸コバルト(Co(H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>)、第1リン酸カルシウム(Ca(H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>)、第1リン酸亜鉛(Zn(H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>)、および第1リン酸マグネシウム(Mg(H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>)のうちの1種以上を含むことができる。

10

【0014】

本発明の一実施例による電磁鋼板積層体は、複数の電磁鋼板と、複数の電磁鋼板の間に位置する熱融着層とを含み、熱融着層は、有機樹脂および有機樹脂に無機ナノ粒子が置換された有/無機複合体を含む第1組成物15~70重量%と、金属リン酸塩およびリン酸を含む第2組成物20~80重量%と、カップリング剤1~10重量%とを含む。

カップリング剤は、シラン系カップリング剤、チタン酸塩系カップリング剤、およびアルミン酸塩系カップリング剤のうちの1種以上を含むことができる。

【0015】

本発明の一実施例による電磁鋼板製品の製造方法は、接着コーティング組成物を準備する段階と、接着コーティング組成物を電磁鋼板の表面にコーティングした後、硬化して接着コーティング層を形成する段階と、接着コーティング層が形成された複数の電磁鋼板を積層し、熱融着して熱融着層を形成する段階と、熱融着された電磁鋼板積層体を応力除去焼鈍して、接着層を形成する段階とを含む。

20

【0016】

接着コーティング層を形成する段階は、200~600の温度範囲で行われてもよい。

熱融着層を形成する段階は、150~300の温度、0.5~5.0Mpaの圧力および0.1~120分の加圧条件で熱融着することができる。

熱融着層を形成する段階は、昇温段階および融着段階を含み、昇温段階の昇温速度は10/分~1000/分であってよい。

30

【0017】

接着層を形成する段階は、500~900の温度で30~180分間行われてもよい。

接着層を形成する段階は、変性気体または窒素(N<sub>2</sub>)気体雰囲気で行われてもよい。

接着層を形成する段階は、液化天然ガス(LNG)10~30体積%および空気70~90体積%を含む変性気体雰囲気で行われてもよい。

【発明の効果】

【0018】

本発明の一実施例によれば、接着コーティング層自体の耐油性、密着性、耐蝕性、絶縁性を改善し、互いに異なる電磁鋼板を接着させることにおいて接着力、耐スクラッチ性、耐候性、溶接性、高温耐油性を向上させることができる。

40

本発明の一実施例によれば、溶接、クランピング、インターロッキングなど既存の締結方法を使用せずに、電磁鋼板を接着することができるため、電磁鋼板製品の磁性がより優れている。

【発明を実施するための形態】

【0019】

第1、第2および第3などの用語は、多様な部分、成分、領域、層および/またはセクションを説明するために使用されるが、これらに限定されない。これら用語は、ある部分、成分、領域、層またはセクションを他の部分、成分、領域、層またはセクションと区別

50

するためだけに使用される。したがって、以下で記述する第1部分、成分、領域、層またはセクションは、本発明の範囲を逸脱しない範囲内で第2部分、成分、領域、層またはセクションとして言及され得る。

【0020】

ここで使用される専門用語は、単に特定の実施例を言及するためのものであり、本発明を限定することを意図しない。ここで使用される単数の形態は、文言がこれと明確に反対の意味を示さない限り、複数の形態も含む。明細書で使用される「含む」の意味は、特定の特性、領域、整数、段階、動作、要素および/または成分を具体化し、他の特性、領域、整数、段階、動作、要素および/または成分の存在や付加を除外させるものではない。

ある部分が他の部分の「上に」と言及する場合、これは他の部分の直上または上にあるか、またはその間に他の部分が介され得る。対照的に、ある部分が他の部分の「直上に」と言及する場合、その間に他の部分が介されない。

【0021】

異なって定義していないが、ここで使用される技術用語および科学用語を含む全ての用語は、本発明が属する技術分野における通常の知識を有する者が一般に理解する意味と同一の意味を有する。通常使用される辞書に定義された用語は、関連技術文献と現在開示された内容に符合する意味を有するものに追加解釈され、定義されない限り、理想的または非常に公式的な意味に解釈されない。

【0022】

以下、添付した図面を参照して本発明の実施例について本発明が属する技術分野における通常の知識を有する者が容易に実施することができるように詳細に説明する。しかし、本発明は、多様な異なる形態に実現することができ、ここで説明する実施例に限定されない。

【0023】

本発明の一実施例では、電磁鋼板接着コーティング組成物、電磁鋼板積層体、電磁鋼板製品の製造方法をそれぞれ提供する。

本発明の一実施例による電磁鋼板接着コーティング組成物は、全体固形分100重量%を基準として、有機樹脂および有機樹脂に無機ナノ粒子が置換された有/無機複合体を含む第1組成物15~70重量%と、金属リン酸塩およびリン酸を含む第2組成物20~80重量%およびカップリング剤1~10重量%とを含む。本発明の一実施例による電磁鋼板接着コーティング組成物は、溶接、クランプ、インターロッキングなど既存の締結方法を使用せずに、電磁鋼板を接着(締結)することができるようにする。また応力除去焼鈍工程後にもボンディング力を維持することができる。本発明の一実施例で電磁鋼板は、無方向性または方向性電磁鋼板であり、より具体的に無方向性電磁鋼板であってもよい。

【0024】

以下、各成分別に具体的に説明する。

第1組成物は、有機樹脂および有機樹脂に無機ナノ粒子が置換された有/無機複合体を含む。

有機樹脂は、後述する熱融着時、熱融着層を形成し、電磁鋼板の間に介されて、電磁鋼板の間に接着力を付与する。熱融着層が電磁鋼板の間で接着力を適切に付与することができない場合、精密に積層された複数の電磁鋼板が工程進行過程で外れるようになる。積層位置が外れるようになれば、最終製造された電磁鋼板製品の品質に悪影響を与えるようになる。有機樹脂により熱融着以降、接着力を確保することによって、積層された電磁鋼板の位置が外れないようにすることができる。

【0025】

有機樹脂は、後述する応力除去焼鈍段階で一部は分解されるが、一部は残存して、電磁鋼板の間に接着力を付与する。この時、有機樹脂は、芳香族炭化水素を含むことができる。この時、芳香族炭化水素は、高温でも熱分解されず、応力除去焼鈍工程後にも接着力を維持するようになる。

10

20

30

40

50

芳香族炭化水素を含む有機樹脂とは、主鎖および/または側鎖に芳香族炭化水素を含む樹脂を意味する。具体的に芳香族炭化水素は、ベンゼン、トルエン、キシレン、ナフタレン、アントラセンおよびベンゾピレンのうちから選択される1種以上を作用基として含むことができる。

【0026】

有機樹脂は、具体的にエポキシ系樹脂、エステル系樹脂、アクリル系樹脂、スチレン系樹脂、ウレタン系樹脂、およびエチレン系樹脂のうちから選択される1種以上を含むことができる。この時、先に例示した樹脂中の1種または2種以上の混合物を選択することによって、熱融着層、接着層の耐熱性を向上させることができる。言い換えると、有機樹脂は、熱融着層、接着層の絶縁性、耐熱性、表面特性などを改善するのに寄与する。

10

【0027】

有機樹脂は、重量平均分子量が1,000~100,000であり、数平均分子量が1,000~40,000であってもよい。重量平均分子量および数平均分子量と関連して、各下限未満である場合、硬化性、強度など接着コーティング層の物性が低下することがあり、各上限超過である場合、有機樹脂内相(phase)分離が起こることがあり、金属リン酸塩との相溶性が落ちることがある。より具体的に、有機樹脂は5,000~30,000の重量平均分子量を有することができる。

【0028】

また、水溶性樹脂の軟化点(T<sub>g</sub>)は、30~150であってもよく、固体分率(固形分の含有量)は10~50重量%であってもよい。もし水溶性樹脂の軟化点(T<sub>g</sub>)が120超過である場合、組成物の粘度が過度に高くなり、コーティング作業性が低下することがある。

20

【0029】

有機樹脂は、第1組成物で10~80重量%含まれてもよい。有機樹脂が過度に少なく含まれる場合、熱融着層の接着力を適切に確保できない問題が発生することがある。有機樹脂が過度に多く含まれる場合、有機樹脂は応力除去焼鈍段階で一部熱分解されるため、接着層の接着力を適切に確保できない問題が発生することがある。より具体的に有機樹脂は、第1組成物で20~70重量%含まれてもよい。

【0030】

第1組成物は、有機樹脂に無機ナノ粒子が置換された有/無機複合体を含む。前述したように、有機樹脂は、応力除去焼鈍段階で一部熱分解されるため、有機樹脂だけでは接着層の接着力を適切に確保するのが難しい。接着層の接着力を適切に付与するために、有機樹脂に無機ナノ粒子が置換された有/無機複合体を含む。無機ナノ粒子が応力除去焼鈍段階後、接着層の接着力を付与ようになる。また、金属リン酸塩の浸漬(precipitation)やかたまり(agglomeration)現象を防止し、応力除去焼鈍(Stress relief Annealing)後の表面特性をより優れるように発現するのに寄与する。

30

【0031】

有/無機複合体で有機樹脂は、前述した有機樹脂の説明と同一であるため、重複する説明は省略する。前述した第1組成物の有機樹脂と有/無機複合体で有機樹脂は、同一の種類であってもよい。無機ナノ粒子を有機樹脂に置換させずに、単独で添加する場合、無機ナノ粒子同士で凝集し、分散が行われなくなる。

40

具体的に、無機ナノ粒子は、SiO<sub>2</sub>、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、TiO<sub>2</sub>、MgO、ZnO、CaO、およびZrO<sub>2</sub>のうち1種以上を含むことができる。

【0032】

無機ナノ粒子は、平均粒子が5~100nmであってもよい。無機ナノ粒子の大きさが過度に小さい場合、有/無機複合体の製造が難しく、過度に大きい場合、相溶性が落ちることがある。

無機ナノ粒子は、有/無機複体内に5~60重量%置換されてもよい。つまり、有/無機複合体100重量%に対して無機ナノ粒子が5~60重量%および有機樹脂40~9

50

5重量%を含むことができる。無機ナノ粒子の量が過度に少なければ、応力除去焼鈍後、接着層の接着力を適切に確保するのが難しいこともある。無機ナノ粒子の量が過度に多ければ、無機ナノ粒子が凝集する問題が発生することがある。

【0033】

有/無機複合体は、第1組成物で20~90重量%含まれてもよい。有/無機複合体が過度に少なく含まれる場合、応力除去焼鈍後、接着層の接着力を適切に確保するのが難しいこともある。また、金属リン酸塩の浸漬(precipitation)やかたまり(agglomeration)現象が起こることがある。有/無機複合体が過度に多く含まれる場合、相対的に有機樹脂の含有量が低くなり、熱融着層の接着力を適切に確保するのが難しいこともある。より具体的に有機樹脂は、第1組成物で30~80重量%含まれてもよい。

10

【0034】

第1組成物は、電磁鋼板接着コーティング組成物全体固形分100重量%を基準として15~70重量%含まれてもよい。第1組成物の含有量が過度に少なければ、熱融着層および応力除去焼鈍後、接着層の接着力を適切に確保するのが難しいこともある。第1組成物の含有量が過度に多ければ、相対的に第2組成物の含有量が減り、接着層の接着力を適切に確保できない問題が発生することがある。より具体的に第1組成物は、20~60重量%含まれてもよい。

【0035】

第2組成物は、金属リン酸塩およびリン酸を含む。

20

本発明の一実施例で使用される金属リン酸塩は、リン酸( $H_3PO_4$ )と、金属水酸化物( $M_x(OH)_y$ )または金属酸化物( $M_xO$ )の反応を利用して製造されてもよく、その具体的な例としては、後述する実施例で使用される第1リン酸アルミニウム( $Al(H_3PO_4)_3$ )、第1リン酸コバルト( $Co(H_3PO_4)_2$ )、第1リン酸カルシウム( $Ca(H_3PO_4)_2$ )、第1リン酸亜鉛( $Zn(H_3PO_4)_2$ )、第1リン酸マグネシウム( $Mg(H_3PO_4)_2$ )などがある。

【0036】

金属リン酸塩は、熱融着による熱融着層の高温接着性、高温耐油性および応力除去焼鈍(Stress Relief Annealing)後、接着層の接着特性に寄与する。前述した炭化水素を含む樹脂および有/無機複合体と共に含まれるため、接着コーティング組成物は、有/無機混合組成物になる。

30

【0037】

先に簡単に言及したが、金属リン酸塩は、 $M_x(H_3PO_4)_y$ の化学式で表示されるものであり、このような金属リン酸塩1種または2種以上の混合物が前記第2成分に含まれてもよい。

先に簡単に言及したが、第2組成物に含まれる金属リン酸塩は、金属水酸化物( $M_x(OH)_y$ )または金属酸化物( $M_xO$ )とリン酸( $H_3PO_4$ )の反応を利用して製造されてもよい。

例えば、85重量%のリン酸( $H_3PO_4$ )を含むリン酸水溶液を、100重量部を基準にして、金属水酸化物( $M_x(OH)_y$ )または金属酸化物( $M_xO$ )をそれぞれ投入し、80~90で6~10時間反応させれば、それぞれの金属リン酸塩を得ることができる。

40

【0038】

この時、金属水酸化物( $M_x(OH)_y$ )または金属酸化物( $M_xO$ )の投入量は、水酸化アルミニウム( $Al(OH)_3$ )である場合、1~40重量部、水酸化コバルト( $Co(OH)_2$ )である場合、1~10重量部、酸化カルシウム( $CaO$ )である場合、1~15重量部、酸化亜鉛( $ZnO$ )である場合、1~20重量部、酸化マグネシウム( $MgO$ )である場合、1~10重量部で、それぞれ前記リン酸水溶液を100重量部基準にしたものである。このような各範囲を満たす場合、耐熱性および/または接着性の均衡を維持することができる。

50

## 【 0 0 3 9 】

金属リン酸塩は、第2組成物100重量%を基準として、10～80重量%含まれてもよい。金属リン酸塩が過度に少なく含まれる場合、応力除去焼鈍後、接着層の接着力を適切に確保するのが難しいこともある。金属リン酸塩が過度に多く含まれる場合、金属リン酸塩間の凝集によって、接着層の接着力がむしろ劣位になることがある。

リン酸は、前述した金属リン酸塩と共に熱融着による熱融着層の高温接着性、高温耐油性および応力除去焼鈍(Stress Relief Annealing)後、接着層の接着特性に寄与する。

## 【 0 0 4 0 】

リン酸は、第2組成物100重量%を基準として、20～90重量%含まれてもよい。リン酸が過度に少なく含まれる場合、応力除去焼鈍後、接着層の接着力を適切に確保するのが難しいこともある。リン酸は、水分を吸収する性質があり、リン酸が過度に多く含まれる場合、接着コーティング組成物での水分を吸収して、接着コーティング組成物を凝集させることがある。これによって、接着層の接着力がむしろ劣位になることがある。より具体的にリン酸は第2組成物100重量%を基準として、30～70重量%含まれてもよい。

10

## 【 0 0 4 1 】

第2組成物は、電磁鋼板接着コーティング組成物全体固形分100重量%を基準として20～80重量%含まれてもよい。第2組成物の含有量が過度に少なければ、応力除去焼鈍後、接着層の接着力を適切に確保できない問題が発生することがある。第2組成物の含有量が過度に多ければ、相対的に第1組成物の含有量が減り、熱融着層および応力除去焼鈍後、接着層の接着力を適切に確保するのが難しいこともある。具体的に第2組成物は30～70重量%含まれてもよい。

20

## 【 0 0 4 2 】

カップリング剤は、接着層の耐熱性および/または接着性の均衡を維持することに寄与し、特に応力除去焼鈍工程後、接着力を向上させることに寄与する。

具体的にカップリング剤として、シラン系カップリング剤、チタン酸塩系カップリング剤、およびアルミン酸塩系カップリング剤のうち1種以上を含むことができる。

## 【 0 0 4 3 】

シラン系カップリング剤は、ジメチルジクロロシラン、メチルジクロロシラン、メチルトリクロロシラン、フェニルトリクロロシラン、トリクロロシラン、トリメチルクロロシラン、シリコンテトラクロライド、およびビニルトリクロロシランのうち1種以上を含むことができる。

30

## 【 0 0 4 4 】

チタン酸塩系カップリング剤は、チタントリイソステアロイルイソプロポキシド、イソプロピルトリ(ジオクチルリン酸塩)チタン酸塩、イソプロピルトリオレイルチタン酸塩、チタントリス(ドデシルベンゼンスルホン酸塩)イソプロポキシド、イソプロピルトリ(ジオクチルピロリン酸塩)チタン酸塩、ジ(ジオクチルピロホスファート)エチレンチタン酸塩、およびテトライソプロピルジ(ジオクチルリン酸塩)チタン酸塩のうち1種以上を含むことができる。

40

## 【 0 0 4 5 】

アルミン酸塩系カップリング剤は、アルミニウムチタン複合物、ビス(エチルアセト酢酸塩)アルミニウムジイソプロピル、ビス(アセチル酢酸塩)アルミニウムジイソプロピル、酢酸アルミニウムカップリング剤、イソプロピルエステルステアロイルオキシアルミニウム、およびイソプロピルエステルイステアロイルオキシアルミニウムのうち1種以上を含むことができる。

## 【 0 0 4 6 】

カップリング剤は、接着コーティング組成物固形分100重量%に対して1～10重量%含まれてもよい。前述した範囲を満たす場合、接着層の耐熱性および/または接着性の均衡を維持することができ、特に応力除去焼鈍工程後、接着力が顕著に向上することがで

50

きる。カップリング剤の含有量が過度に少ない場合、応力除去焼鈍工程後、接着性が劣位になることがある。カップリング剤の含有量が過度に多い場合、熱融着時に接着力が劣位になることがある。より具体的に、カップリング剤は5～10重量%含まれてもよい。

#### 【0047】

前述した成分以外に電磁鋼板接着コーティング組成物は、塗布を容易で、成分を均一に分散させるために溶媒を含むことができる。前述した固形分の表現は、溶媒を含む揮発分を除き、残りの固形分を称す。

#### 【0048】

本発明の一実施例による電磁鋼板積層体は、複数の電磁鋼板と、複数の電磁鋼板の間に位置する熱融着層とを含む。この時、熱融着層とは、前述した接着コーティング組成物を電磁鋼板表面にコーティングし、硬化して接着コーティング層を形成し、これを積層して熱融着することによって形成された層を意味する。熱融着過程で樹脂を分解させずに、接着コーティング組成物内の樹脂を硬化して熱融着層に接着力を付与するようになる。このように熱融着層は、適切な接着力を確保することによって、積層された電磁鋼板の位置が外れないようにすることができる。熱融着過程で接着コーティング組成物内の溶媒など揮発成分は除去され、固形分だけが残存するようになるため、熱融着層は、接着コーティング組成物内の固形分と成分および成分比率が同一である。熱融着層の成分に対する説明は接着コーティング組成物の説明と重複するため、重複する説明を省略する。

熱融着層の厚さは、0.5～25 μmであってもよい。このような範囲を満たす場合、熱融着層の優れた表面特性（例えば、絶縁性、耐蝕性、密着性など）を有することができる。

#### 【0049】

本発明の一実施例による電磁鋼板製品の製造方法は、接着コーティング組成物を準備する段階と、接着コーティング組成物を電磁鋼板の表面にコーティングした後、硬化して接着コーティング層を形成する段階と、接着コーティング層が形成された複数の電磁鋼板を積層し、熱融着して熱融着層を形成する段階と、熱融着された電磁鋼板積層体を応力除去焼鈍して、接着層を形成する段階とを含む。

#### 【0050】

以下、各段階別に具体的に説明する。

まず、接着コーティング組成物を準備する。接着コーティング組成物に対しては前述したため、重複する説明を省略する。

次に、接着コーティング組成物を電磁鋼板の表面にコーティングした後、硬化して接着コーティング層を形成する。この段階は、接着コーティング組成物の硬化のために200～600の温度範囲で行われてもよい。

#### 【0051】

接着コーティング層が形成された複数の電磁鋼板を積層し、熱融着して熱融着層を形成する。熱融着する段階を通じて接着コーティング層内の樹脂成分が熱融着し、熱融着層を形成するようになる。

熱融着する段階は、150～300の温度、0.5～5.0 Mpaの圧力、および0.1～120分の加圧条件で熱融着することができる。前記条件は、それぞれ、独立して満たすことができ、2以上の条件を同時に満たすこともできる。このように熱融着する段階での温度、圧力、時間条件を調節することによって、電磁鋼板の間に、ギャップや、気孔なしに、稠密に熱融着され得る。

熱融着する段階は、昇温段階および融着段階を含み、昇温段階の昇温速度は10 /分～1000 /分であり得る。

#### 【0052】

次に、熱融着された電磁鋼板積層体を応力除去焼鈍して、接着層を形成する。応力除去焼鈍は500～900の温度で30～180分間行われてもよい。

接着層を形成する段階は、変性気体または窒素(N<sub>2</sub>)気体雰囲気で行われてもよい。具体的に変性気体は、液化天然ガス(LNG)10～30体積%および空気70～90体

10

20

30

40

50

積%含む気体を意味する。窒素気体雰囲気とは、窒素を含む雰囲気を意味する。具体的に窒素100体積%気体または窒素90~100体積%未満および水素0超過~10体積%含む気体を意味する。

【0053】

このように本発明の一実施例による電磁鋼板製品製造方法により製造する場合、応力除去焼鈍(Stress Relief annealing)後にも電磁鋼板自体の磁性(具体的に、鉄損、磁束密度など)が向上するだけでなく、接着コーティング層による高温接着性および高温耐油性に優れ、特に応力除去焼鈍(Stress Relief Annealing)後にも表面特性および接着特性が低下しない。

【0054】

以下、本発明の好ましい実施例、これと対比される比較例、およびこれらの評価例を記載する。しかし、下記の実施例は本発明の好ましい一実施例に過ぎず、本発明が下記の実施例に限定されるものではない。

【実施例】

【0055】

接着コーティング組成物は、下記表1に示し、有機樹脂に置換されたナノ粒子の含有量は有機樹脂の固形分100重量%に対して10重量%に固定し、粒子の大きさは100nmである。

無方向性電磁鋼板(50X50mm、0.35mmt)を供試片で準備した。下記表1に整理された成分から構成された接着コーティング溶液をBar CoaterおよびRoll Coaterを利用して各準備された供試片に上部と下部に一定の厚さ(約5.0μm)に塗布して400℃で20秒間硬化した後、空気中で徐々に冷却させて、接着コーティング層を形成した。

【0056】

接着コーティング層がコーティングされた電磁鋼板を高さ20mmに積層した後、500kgfの力で加圧して220℃、60分間熱融着した。融着条件下から得た電磁鋼板を応力除去焼鈍条件である780℃、窒素100体積%雰囲気で応力除去焼鈍を行った。条件別熱融着された電磁鋼板の接着力と応力除去焼鈍を行った各電磁鋼板に対する剪断面引張法により接着力を測定した。

その具体的な評価条件は次の通りである。

【0057】

表面特性：各接着コーティング組成物により形成された熱融着前コーティング層に対して、絶縁性、耐蝕性、および密着性を総合的に観察して評価したものであり、絶縁性、耐蝕性、および密着性が全て優れる場合は非常に優秀、これらのうち2つの項目が優れる場合は優秀、一つの項目が優れる場合は普通、全て劣位にある場合は劣位と表現した。

【0058】

接着力：上/下部ジグ(JIG)に一定の力で固定させた後、一定の速度で引きながら積層されたサンプルの引張力を測定する装置を使用して、応力除去焼鈍前後の接着力をそれぞれ測定した。この時、測定された値は積層されたサンプルの界面中で最小接着力を有する界面が脱落する地点を測定した。

【0059】

応力除去焼鈍前後の接着力は、それぞれ異なる基準で評価した。熱融着以降の応力除去焼鈍前に測定した接着力が1.0MPa以上である時は非常に優秀、0.5MPa以上である時は優秀、0.2MPa以上である時は普通、0.1MPa以下である時は劣位と表現した。一方、応力除去焼鈍まで終えた後に測定した接着力が0.5MPa以上である時は非常に優秀、0.2MPa以上である時は優秀、0.1MPa以上である時は普通、0.05MPa以下である時は劣位と表現した。

【0060】

磁性改善率：応力除去焼鈍前/後のモーターコアの鉄損を測定した。鉄損はW10/400を測定した。

10

20

30

40

50

【 0 0 6 1 】

【表 1】

	接着コーティング組成液							
	第 1 組成物			第 2 組成物			カップリング剤	
	有機樹脂	有/無機複合体	第 1 組成物含有量 (重量%)	リン酸	金属リン酸塩	第 2 組成物含有量 (重量%)	種類	含有量 (重量%)
	種類/含有量 (重量%)	種類/含有量 (重量%)		含有量 (重量%)	種類/含有量 (重量%)			
実施例 1	シロキサン /30	TiO <sub>2</sub> -スチレン /70	40	30	MAP/70	55	Phenyltrichlorosilane	5
実施例 2	シロキサン /20	TiO <sub>2</sub> -エポキシ /80	25	80	MZP/20	70	Trimethylchlorosilane	5
実施例 3	フェノール /20	SiO <sub>2</sub> -エチレン /80	30	50	MMP/50	60	Vinyltrichlorosilane	10
実施例 4	フェノール /30	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -ウレタン /70	40	70	MCP/30	55	チタントリイソステアロイルイソプロポキシド	5
実施例 5	ビニル/50	MgO-スチレン /50	50	20	MZP/80	40	ビス(エチルアセト酢酸塩)アルミニウムジイソプロピル	10
実施例 6	ウレタン/70	ZnO-アクリル /30	20	60	MMP/40	70	Methyldichlorosilane	10
実施例 7	ウレタン/30	SiO <sub>2</sub> -スチレン /70	40	90	MAP/ 10	50	Dimethyldichlorosilane	10
実施例 8	エポキシ/30	SiO <sub>2</sub> -エポキシ /70	30	30	MAP/70	65	Dimethyldichlorosilane	5
実施例 9	エポキシ/20	ZnO-エチレン /80	50	80	MZP/20	40	Silicontetrachloride	10
実施例 10	アクリル/20	SiO <sub>2</sub> -アクリル /80	45	50	MMP/50	45	Phenyltrichlorosilane	10
実施例 11	アクリル/70	ZnO-エステル /30	60	70	MCP/30	35	Trimethylchlorosilane	5
実施例 12	エチレン/50	SiO <sub>2</sub> -ウレタン /50	15	40	MCoP/40	80	Vinyltrichlorosilane	5
実施例 13	エチレン/50	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -アクリル /50	35	20	MZP/80	60	イソプロピルトリオレイルチタン酸塩	5
実施例 14	スチレン/20	SiO <sub>2</sub> -ウレタン /80	20	90	MAP/10	75	酢酸アルミニウムカップリング剤	5
比較例	エポキシ/30	SiO <sub>2</sub> -エポキシ /70	35	40	MAP/60	65	-	-

MAP = Al (H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>, MCoP = (Co (H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>), MCP = Ca (H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>, MZP = Zn (H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>, MMP = Mg (H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>

【 0 0 6 2 】

10

20

30

40

【表 2】

	コーティング層 表面特性	ボンディングコア特性		
		接着力		磁性改善率 (応力除去焼鈍前/後)
		熱融着	応力除去焼鈍	
実施例 1	◎	○	○	◎
実施例 2	◎	○	○	◎
実施例 3	◎	○	○	◎
実施例 4	◎	○	○	◎
実施例 5	◎	◎	△	◎
実施例 6	◎	○	◎	◎
実施例 7	◎	○	○	◎
実施例 8	◎	○	◎	◎
実施例 9	◎	◎	△	◎
実施例 10	◎	○	◎	◎
実施例 11	◎	◎	△	◎
実施例 12	◎	○	○	◎
実施例 13	◎	○	○	◎
実施例 14	◎	○	◎	◎
比較例	◎	◎	×	△

10

20

## 【 0 0 6 3 】

表 1 および表 2 から分かるように、構成成分および成分比率を全て満たす実施例 1 ~ 実施例 1 6 は、表面特性、熱融着層および接着層の接着力および鉄損改善率が全て優れていることを確認できる。

## 【 0 0 6 4 】

本発明は、前記実施例に限定されるのではなく、互いに異なる多様な形態に製造可能であり、本発明が属する技術分野における通常の知識を有する者は、本発明の技術的な思想や必須の特徴を変更することなく他の具体的な形態に実施可能であることを理解できるはずである。したがって、以上で記述した実施例は、全ての面で例示的なものであり、限定的なものではないと理解しなければならない。

30

フロントページの続き

(51) Int.Cl.		F I			
<b>B 3 2 B</b>	<b>15/18</b>	<b>(2006.01)</b>	<b>B 3 2 B</b>	<b>15/18</b>	
<b>B 3 2 B</b>	<b>27/18</b>	<b>(2006.01)</b>	<b>B 3 2 B</b>	<b>27/18</b>	<b>Z</b>

(72)発明者 ハ, ボン - ウ  
 大韓民国 3 7 8 5 9 ギョンサンブク - ド ポハン - シ ナム - グ, ドンヘアン - 口, 6 2 6 1  
 (コエドン - ドン), ポスコ内

(72)発明者 ノ, テ - ヨン  
 大韓民国 3 7 8 5 9 ギョンサンブク - ド ポハン - シ ナム - グ, ドンヘアン - 口, 6 2 6 1  
 (コエドン - ドン), ポスコ内

審査官 山本 悦司

(56)参考文献 特開2012 - 1807 (JP, A)  
 特表2019 - 508573 (JP, A)  
 特表2016 - 540901 (JP, A)  
 特開2016 - 9710 (JP, A)  
 国際公開第2006 / 043612 (WO, A1)  
 特表2021 - 510181 (JP, A)  
 中国特許出願公開第101659799 (CN, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)  
 C 0 9 J 1 / 0 0 - 2 0 1 / 1 0  
 B 3 2 B 1 / 0 0 - 4 3 / 0 0