

明 細 書

発明の名称：

接着被膜付き電磁鋼板及び積層コア、並びに、それらの製造方法

技術分野

[0001] 本開示は、接着被膜付き電磁鋼板及び積層コア、並びに、それらの製造方法に関する。

本願は、2023年9月26日に、日本に出願された特願2023-163617号に基づき優先権を主張し、その内容をここに援用する。

背景技術

[0002] 従来、回転電機等に使用されるコア（つまり鉄心）は、複数の電磁鋼板が互いに積層された「積層コア」が用いられている。複数の電磁鋼板は、溶接、カシメ、ボルト締め、接着等の方法により固定される。

しかし、溶接、カシメ、ボルト締めの方法による、複数の電磁鋼板の固定では、加工時に、機械的応力、熱的応力、層間短絡等が生じ易い。そのため、電磁鋼板の磁気特性が劣化し、積層コアの性能が十分に発揮され難い。

[0003] 一方、接着の方法による、複数の電磁鋼板の固定では、接着被膜付き電磁鋼板を使用し、加熱及び加圧により、接着被膜を硬化させて接着能を発現させて、複数の電磁鋼板を互いに接着させる。

接着被膜付き電磁鋼板を使用した複数の電磁鋼板の固定では、加工時に、機械的応力、熱的応力、層間短絡等が生じ難い。そのため、電磁鋼板の磁気特性が劣化し難く、積層コアの性能が十分に発揮され易い。

このような有利な点から、接着の方法による、複数の電磁鋼板の固定について、種々の技術が検討されている。

[0004] 例えば、特許文献1では、「表面に、加熱及び／又は加圧により接着能を発揮する絶縁被膜を有する電磁鋼板であって、上記被膜が、ガラス転移点（ T_g ） 80°C ～ 150°C のエポキシ樹脂又はエポキシ樹脂変性体と、エポキシ樹脂硬化剤と、粒径 $0.01\mu\text{m}$ ～ $0.5\mu\text{m}$ の微粒子状重合体とが分散

した混合物であることを特徴とする接着用表面被覆電磁鋼板」が開示されている。

[0005] また、特許文献2では、「複数の電磁鋼板、および前記複数の電磁鋼板の間に位置する融着層を含み、前記融着層は、下記化学式1で表される繰り返し単位および下記化学式2で表される繰り返し単位を含むポリエチレンアクリレートを含み、前記ポリエチレンアクリレートは、下記化学式1で表される繰り返し単位を65～90重量%、下記化学式2で表される繰り返し単位を10～35重量%含むことを特徴とする電磁鋼板積層体」が開示されている。

[0006] また、特許文献3では、「積層用電磁鋼板であって、電磁鋼板と、前記電磁鋼板の少なくとも片面に設けられ、マルテンス硬さ(HM)が50以上、500未満である接着型絶縁被膜と、を備える積層用電磁鋼板」が開示されている。

[0007] また、特許文献4では、「エポキシ樹脂主成分と、少なくとも1つの硬化剤と、少なくとも1つの充填剤とを含む少なくとも1つの熱硬化性焼付けエナメル層がその平面の1つに設けられた電磁鋼帯または電磁鋼板であって、焼付けエナメル層の充填剤が、金属炭酸塩、金属硫酸塩、金属硫化物、金属ケイ酸塩、もしくは金属リン酸塩、またはこれらの複数からなる任意の混合物を含むことを特徴とする電磁鋼帯または電磁鋼板」が開示されている。

[0008] また、特許文献5では、「電磁鋼板の片面または両面に耐熱接着性絶縁被膜を有する絶縁被膜付き電磁鋼板であって、前記耐熱接着性絶縁被膜が、10質量%以上の、軟化点が20～200℃であるポリカーボネートウレタン樹脂と、前記ポリカーボネートウレタン樹脂100質量部に対して10～1000質量部のフェノール樹脂とを含有する、絶縁被膜付き電磁鋼板」が開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0009] 特許文献1：国際公開第2004/070080号

特許文献2：日本国特表2023-508140号公報

特許文献3：国際公開第2016/017132号

特許文献4：日本国特表2018-518591号公報

特許文献5：日本国特開2017-179233号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0010] しかし、特許文献1～5を含め、従来の技術では、接着被膜の接着強度を上げると、電磁鋼板の磁気特性が低下する現象が生じる。すなわち、接着被膜の接着強度と電磁鋼板の磁気特性とは背反の関係にあり、両立させることは困難である。特に、常温及び高温での、接着被膜付き電磁鋼板の接着強度の確保、及び接着被膜付き電磁鋼板を高温保管した後でも、接着強度の確保が要求される。

[0011] そのため、接着被膜付き電磁鋼板では、常温及び高温での接着強度、高温保管後の接着強度、並びに磁気特性について、さらなる改善が望まれている。

[0012] 本開示の課題は、常温及び高温での接着強度、高温保管後の接着強度、並びに磁気特性が共に優れた接着被膜付き電磁鋼板、及びそれを用いた積層コア、並びに、それらの製造方法を提供することである。

課題を解決するための手段

[0013] 課題を解決するための具体的手段には、以下の態様が含まれる。

<1>本開示の一態様に係る接着被膜付き電磁鋼板は、電磁鋼板と、前記電磁鋼板の片面又は両面の少なくとも一部に設けられた接着被膜とを有し、

前記接着被膜は、

自己架橋性基を有する単量体に由来する構成単位を含む（メタ）アクリル系樹脂粒子A、及び水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bを含み、

前記接着被膜のゲル分率が、20質量%を超え70質量%以下である。

<2>上記<1>の接着被膜付き電磁鋼板において、前記水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bは、自己架橋性基を有する単量体に由来する構成単位を含む

(メタ) アクリル系樹脂であってよい。

<3>上記<1>または<2>の接着被膜付き電磁鋼板において、前記水溶性(メタ)アクリル系樹脂Bの含有質量に対する前記(メタ)アクリル系樹脂粒子Aの含有質量の比が、 $95/5 \sim 85/15$ であってよい。

<4>上記<1>～<3>の接着被膜付き電磁鋼板において、前記自己架橋性基は、N-メチロール基、N-ブチロール基、グリシジル基、及びアルコキシメチルアミド基の1種以上であってよい。

<5>本開示の一態様に係る積層コアは、上記<1>～<4>のいずれかの接着被膜付き電磁鋼板が複数積層され、前記接着被膜の硬化膜により前記電磁鋼板が互いに接着されている。

<6>上記<5>の積層コアにおいて、前記接着被膜は、前記自己架橋性基を有する単量体として(メタ)アクリルアミド基を有する単量体由来する構成単位を含む前記(メタ)アクリル系樹脂粒子A、及び水酸基を有する単量体由来する構成単位を含む前記水溶性(メタ)アクリル系樹脂Bを含む接着被膜であり、かつ前記接着被膜の硬化膜のゲル分率は70質量%以上であってよい。

<7>本開示の一態様に係る接着被膜付き電磁鋼板の製造方法は、上記<1>に記載の接着被膜付き電磁鋼板の製造方法であって、

電磁鋼板の片面又は両面の少なくとも一部に、自己架橋性基を有する単量体由来する構成単位を含む(メタ)アクリル系樹脂粒子A、及び水溶性(メタ)アクリル系樹脂Bを含む、接着被膜形成用塗工液を塗工して塗装鋼板を得る塗工工程と、

前記塗装鋼板を、 $100 \sim 200^{\circ}\text{C}$ の乾燥温度まで $6.0^{\circ}\text{C}/\text{秒}$ 以下の加熱速度で加熱し、前記乾燥温度から前記乾燥温度 -10°C の温度域で10～60秒保持することで乾燥させて、電磁鋼板の表面に接着被膜を形成する被膜形成工程と、

を有する。

<8>上記<7>の接着被膜付き電磁鋼板の製造方法において、前記接着被

膜形成用塗工液が、前記水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bの含有質量に対する前記（メタ）アクリル系樹脂粒子Aの含有質量の比が、 $95/5 \sim 85/15$ であってよい。

<9>本開示の一態様に係る積層コアの製造方法は、上記<5>に記載の積層コアの製造方法であって、

前記接着被膜付き電磁鋼板を打ち抜いて打ち抜き部材を得る打ち抜き工程と、

前記打ち抜き部材を、複数枚積層して積層体を得る積層工程と、

前記積層体を、 $200 \sim 300^{\circ}\text{C}$ の温度域の加圧温度に加熱し、前記加圧温度 $\sim$ 前記加圧温度 -10°C の範囲で、 $0.5 \sim 10\text{MPa}$ の加圧力をかけたまま $30 \sim 60$ 分間保持することで、前記接着被膜を硬化させて前記硬化膜を形成する接着工程と、を有する。

発明の効果

[0014] 本開示の上記態様によれば、常温及び高温での接着強度、高温保管後の接着強度、及び磁気特性が共に優れた接着被膜付き電磁鋼板、及びそれを用いた積層コア、並びに、それらの製造方法が提供される。

図面の簡単な説明

[0015] [図1]本開示の接着被膜付き電磁鋼板の一例を示す模式図である。

[図2]本開示の積層コアの一例を表す模式図である。

発明を実施するための形態

[0016] 以下、本開示について説明する。

以下に記載する要件の説明は、本開示の代表的な実施態様に基づいてなされることがあるが、本開示はそのような実施態様に限定されるものではなく、本開示の目的の範囲内において、適宜、変更を加えて実施することができる。

[0017] 本開示において「 $\sim$ 」を用いて示された数値範囲は、「 $\sim$ 」の前後に記載される数値をそれぞれ下限値及び上限値として含む範囲を意味する。

本開示に段階的に記載されている数値範囲において、ある数値範囲で記載

された上限値又は下限値は、他の段階的な記載の数値範囲の上限値又は下限値に置き換えてもよい。また、本開示に記載されている数値範囲において、ある数値範囲で記載された上限値又は下限値は、実施例に示されている値に置き換えてもよい。

[0018] 本開示において、2以上の好ましい態様の組み合わせは、より好ましい態様である。

[0019] 本開示において、積層鋼板用コーティング組成物中の各成分の量は、積層鋼板用コーティング組成物中に各成分に該当する物質が複数存在する場合には、特に断らない限り、積層鋼板用コーティング組成物中に存在する上記複数の物質の合計量を意味する。

[0020] 本開示において、「(メタ)アクリル系単量体」とは、(メタ)アクリロイル基を有する単量体を意味する。

本開示において、「(メタ)アクリル系樹脂」とは、(メタ)アクリル系単量体に由来する構成単位を含み、かつ、(メタ)アクリル系単量体に由来する構成単位の占める割合が50質量%以上である樹脂を意味する。

[0021] 本開示において、「(メタ)アクリル」は「アクリル」及び「メタクリル」の両方を包含する用語であり、「(メタ)アクリレート」は「アクリレート」及び「メタクリレート」の両方を包含する用語であり、「(メタ)アクリロイル」は「アクリロイル」及び「メタクリロイル」の両方を包含する用語であり、「(メタ)アクリルアミド」は、「アクリルアミド」及び「メタクリルアミド」の両方を包含する用語である。

[0022] 本開示において、「n-」はノルマルを意味し、「i-」はイソを意味し、「s-」はセカンダリーを意味し、「t-」はターシャリーを意味する。

[0023] 本開示において、「質量%」と「重量%」とは同義であり、「質量部」と「重量部」とは同義である。

[0024] 本開示において「工程」との語は、独立した工程だけでなく、他の工程と明確に区別できない場合であっても、その工程の所期の目的が達成されれば、本用語に含まれる。

[0025] [接着被膜付き電磁鋼板]

本開示の接着被膜付き電磁鋼板は、電磁鋼板と、電磁鋼板の片面又は両面の少なくとも一部に設けられた接着被膜と、を有する（図1参照）。

接着被膜は、接着被膜形成用塗工液に由来する、自己架橋性基を有する単量体に由来する構成単位を含む（メタ）アクリル系樹脂粒子A、及び水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bを含む。

そして、接着被膜のゲル分率は、20質量%を超え70質量%以下である。

ここで、図1中、10は接着被膜付き電磁鋼板、10Aは電磁鋼板、10B及び10Cは接着被膜を示す。

[0026] 本開示の接着被膜付き電磁鋼板は、上記構成により、室温（常温）及び高温での接着強度、高温保管後の接着強度、及び磁気特性が共に優れる（積層コアとしての磁気特性にも優れる。なお、本開示において「室温（常温）」とは25℃のことをいい、「高温」とは150℃のことをいう。

その理由は、次の通り推測される。アクリル樹脂は、炭素－炭素結合で主鎖が構成されるため、化学的に安定しており、接着被膜のゲル分率を特定範囲とすることで、高温保管後の接着強度が担保される。また、自己架橋基を有するアクリル系樹脂粒子Aは自己架橋基が結合することで常温から高温での接着強度が強化される。水溶性アクリル系樹脂Bを配合することで、電磁鋼板に付与される応力が接着面に均等に分散されるため、磁気特性が優れるものと推察される。

[0027] 以下、本開示の接着被膜付き電磁鋼板の詳細について説明する。

[0028] （電磁鋼板）

電磁鋼板は、接着被膜が形成される対象の鋼板であり、特に制限はない。

電磁鋼板は、無方向性電磁鋼板であってもよいし、方向性電磁鋼板であってもよい。

具体的には、電磁鋼板としては、例えば、JIS C 2552：2014の無方向性電磁鋼帯、JIS C 2553：2019の方向性電磁鋼帯、JIS C 2558：2021の無方向性薄電磁鋼帯又は方向性薄電磁

鋼帯を所定の長さに切断したものを採用できる。

[0029] (接着被膜)

接着被膜は、電磁鋼板の片面又は両面の少なくとも一部に設けられる(図1参照)。つまり、接着被膜は、例えば、電磁鋼板の片面又は両面の全面に設けられていてもよいし、電磁鋼板の片面又は両面に、千鳥配列(上下左右へ交互にずらした配列)等の模様状に設けられていてもよい。

ただし、接着被膜は、電磁鋼板の片面の面積に対して、60%以上、80%以上又は100%で設けられていることが好ましい。

[0030] —ゲル分率—

接着被膜のゲル分率は、20質量%超え70質量%以下である。

接着被膜のゲル分率が20質量%以下であると、高温保管後の接着強度が十分に確保できない。また、外観が悪化する。

接着被膜のゲル分率が70質量%超えであると、高温での接着強度が十分に確保できない。

また、接着被膜のゲル分率を過度に上げると、接着強度が過度に高く、接着被膜が硬くなりすぎて、磁気特性が劣化する。

そのため、接着被膜のゲル分率は、上記範囲とする。接着被膜のゲル分率は、30質量%以上、が好ましく、40質量%以上がより好ましい。接着被膜のゲル分率は、60質量%以下が好ましく、50質量%以下がより好ましい。

[0031] 接着被膜のゲル分率は、酢酸エチルを抽出溶媒に用いて測定される溶媒不溶分の割合である。具体的には、接着被膜のゲル分率は、次の通り測定する。

まず、接着被膜付き電磁鋼板を60mm×60mmのサイズ切断し、2つの試料片を得た。

次に、一方の試料片から接着被膜を除去した。接着被膜を除去した試料片を試料X1とし、試料X1の質量をAとする。

他方の、試料片(つまり接着被膜付きの試料片)を試料X2とし、試料X

2の質量をBとする。

次に、試料X2を、酢酸エチル80gを入れたガラス瓶に入れ、蓋をする。

次に、試料X2を入れたガラス瓶を雰囲気温度23℃、50%RHの環境下に3日間放置する。

次に、試料X2をガラス瓶から取り出し、少量の酢酸エチルを用いて洗浄する。

次に、試料X2を、乾燥温度100℃、乾燥時間24時間の条件で乾燥させる。この乾燥後の試料X2の質量を、精密天秤を用いて正確に測定する。この質量をD（単位：g）とする。

次に、下記式によりゲル分率を計算する。

$$\text{ゲル分率〔質量\%〕} = (D - (B - A)) / (B - A) \times 100$$

[0032] 接着被膜のゲル分率の調整は、例えば、接着被膜を形成する際の、塗工膜の加熱温度、加熱時間、冷却速度等を適宜設定することにて行う。

[0033] （接着被膜の平均厚み）

接着被膜の平均厚みは、1.0～6.0μmが好ましい。接着被膜の平均厚みは、1.5μm以上又は2.0μm以上がより好ましい。また、接着被膜の平均厚みは、4.0μm以下または3.0μm以下がより好ましい。

本開示に係る接着被膜付き電磁鋼板では、接着被膜の平均厚みが1.0～6.0μmと薄膜化した場合であっても、常温及び高温での接着強度、高温保管後の接着強度及び磁気特性が共に優れる。

[0034] 接着被膜の平均厚みの測定方法は、次の通りである。

測定対象の接着被膜付き電磁鋼板を厚み方向に沿って切断し、切断面を観察面とする試験片を得る。

試験片の観察面を、走査型電子顕微鏡（SEM）により観察し、任意の3か所の接着被膜の厚みを測定する。そして、3か所の接着被膜の厚みを算術平均することで、接着被膜の平均厚みを得る。なお、接着被膜と電磁鋼板とは、輝度の違いによって容易に区別することができ、板厚方向中央に存在す

る層を電磁鋼板とみなし、板厚方向の表面及び裏側に存在する層を接着被膜とみなす。

[0035] (接着被膜の成分)

接着被膜は、自己架橋性基を有する単量体に由来する構成単位を含む(メタ)アクリル系樹脂粒子A(以下「特定(メタ)アクリル系樹脂粒子A」とも称する)、及び水溶性(メタ)アクリル系樹脂Bを含む。

接着被膜は、加熱及び加圧により、少なくとも特定(メタ)アクリル系樹脂粒子Aの架橋が進行して、硬化することで、接着能を発現する絶縁性の被膜である。

[0036] [特定(メタ)アクリル系樹脂粒子A]

特定(メタ)アクリル系樹脂粒子Aは、自己架橋性基を有する単量体に由来する構成単位を含むが、具体的には、特定(メタ)アクリル系樹脂粒子Aは、カルボキシ基を有する単量体に由来する構成単位と、自己架橋性基を有する単量体に由来する構成単位と、を含む。

接着被膜は、特定(メタ)アクリル系樹脂粒子Aを1種のみ含んでいてもよく、2種以上含んでいてもよい。

[0037] <カルボキシ基を有する単量体に由来する構成単位>

特定(メタ)アクリル系樹脂粒子Aは、カルボキシ基を有する単量体に由来する構成単位を全構成単位に対して1質量%以上20質量%未満の割合で含むことが好ましい。

本開示において「カルボキシ基を有する単量体に由来する構成単位」とは、カルボキシ基を有する単量体が付加重合して形成される構成単位を意味する。

[0038] カルボキシ基を有する単量体としては、例えば、1分子中に少なくとも1つのカルボキシ基とエチレン性不飽和基とを有する単量体が挙げられる。

エチレン性不飽和基としては、特に限定されず、例えば、ビニル基、アリル基、ビニルフェニル基、(メタ)アクリルアミド基、及び(メタ)アクリロイル基が挙げられる。

エチレン性不飽和基としては、（メタ）アクリロイル基が好ましい。

[0039] カルボキシ基を有する単量体の具体例としては、（メタ）アクリル酸、クロトン酸、マレイン酸、フマル酸、イタコン酸、グルタコン酸、シトラコン酸、 ω -カルボキシ-ポリカプロラクトンモノ（メタ）アクリレート〔例えば、 ω -カルボキシ-ポリカプロラクトン（ $n \div 2$ ）モノアクリレート〕、及びコハク酸誘導体（例えば、2-アクリロイルオキシエチルーコハク酸）が挙げられる。

カルボキシ基を有する単量体としては、カルボキシ基を有する（メタ）アクリル系単量体が好ましく、（メタ）アクリル酸がより好ましく、メタクリル酸が更に好ましい。

[0040] 特定（メタ）アクリル系樹脂粒子Aは、カルボキシ基を有する単量体由来する構成単位を1種のみ含んでもよく、2種以上含んでもよい。

[0041] 特定（メタ）アクリル系樹脂粒子Aにおけるカルボキシ基を有する単量体由来する構成単位の含有率は、特定（メタ）アクリル系樹脂粒子Aの全構成単位に対して、1質量%以上20質量%未満であることが好ましい。

特定（メタ）アクリル系樹脂粒子Aにおけるカルボキシ基を有する単量体由来する構成単位の含有率が、特定（メタ）アクリル系樹脂粒子Aの全構成単位に対して1質量%以上であると、外観、接着強度及び磁気特性が共に優れる傾向にある。このような観点から、特定（メタ）アクリル系樹脂粒子Aにおけるカルボキシ基を有する単量体由来する構成単位の含有率は、特定（メタ）アクリル系樹脂粒子Aの全構成単位に対して、3質量%以上であることが好ましく、5質量%以上であることがより好ましく、8質量%以上であることが更に好ましく、10質量%以上であることが特に好ましい。

[0042] <自己架橋性基を有する単量体由来する構成単位>

特定（メタ）アクリル系樹脂粒子Aは、自己架橋性基を有する単量体由来する構成単位を全構成単位に対して0.1質量%以上7質量%以下の割合で含むことが好ましい。

本開示において「自己架橋性基を有する単量体由来する構成単位」とは

、自己架橋性基を有する単量体が付加重合して形成される構成単位を意味する。

[0043] 本開示において「自己架橋性」とは、架橋剤が存在しなくても架橋し得る性質を意味する。

[0044] 本開示における自己架橋性基は、加熱により自己架橋性を発現し得る。

自己架橋性基が自己架橋性を発現する温度は、自己架橋性基の種類によって異なる。

自己架橋性基は、電磁鋼板同士を接着させる際の温度で自己架橋性を発現すればよく、自己架橋性基が自己架橋性を発現する温度は、特に限定されない。

[0045] 自己架橋性基の具体例としては、N－メチロール基、N－ブチロール基、グリシジル基、及びアルコキシメチルアミド基が挙げられる。

自己架橋性基としては、N－メチロール基、N－ブチロール基、及びグリシジル基からなる群より選ばれる少なくとも1種が好ましい。

[0046] 自己架橋性基を有する単量体の具体例としては、N－ヒドロキシアルキル（メタ）アクリルアミド、N，N－ジヒドロキシアルキル（メタ）アクリルアミド、グリシジル（メタ）アクリレート、及びN－アルコキシメチル（メタ）アクリルアミドが挙げられる。

N－ヒドロキシアルキル（メタ）アクリルアミドとしては、例えば、N－メチロールアクリルアミド（NMAM）、N－ブチロールアクリルアミド（NBMA）、及び、ヒドロキシエチルアクリルアミド（HEAA）が挙げられる。

N，N－ジヒドロキシアルキル（メタ）アクリルアミドとしては、例えば、ジメチロール（メタ）アクリルアミドが挙げられる。

N－アルコキシメチル（メタ）アクリルアミドとしては、例えば、N－メトキシメチル（メタ）アクリルアミド、N－エトキシメチル（メタ）アクリルアミド、及びN－ブトキシメチル（メタ）アクリルアミドが挙げられる。

自己架橋性基を有する単量体としては、N－メチロールアクリルアミド（

NMAM)、N-ブチロールアクリルアミド(NBMA)、及びヒドロキシエチルアクリルアミド(HEAA)からなる群より選ばれる少なくとも1種が好ましく、ヒドロキシエチルアクリルアミド(HEAA)がより好ましい。

[0047] 特定(メタ)アクリル系樹脂粒子Aは、自己架橋性を有する単量体に由来する構成単位を1種のみ含んでもよく、2種以上含んでもよい。

[0048] 特定(メタ)アクリル系樹脂粒子Aにおける自己架橋性を有する単量体に由来する構成単位の含有率は、特定(メタ)アクリル系樹脂粒子Aの全構成単位に対して、0.1質量%以上7質量%以下であることが好ましい。

特定(メタ)アクリル系樹脂粒子Aにおける自己架橋性を有する単量体に由来する構成単位の含有率は、ある態様では、0.1質量%以上6質量%以下の範囲であってもよく、0.1質量%以上5質量%以下の範囲であってもよく、1質量%以上7質量%以下の範囲であってもよく、1.5質量%以上6質量%以下の範囲であってもよく、1.9質量%以上5質量%以下の範囲であってもよい。

[0049] <(メタ)アクリル酸アルキルエステル単量体に由来する構成単位>

特定(メタ)アクリル系樹脂粒子Aは、(メタ)アクリル酸アルキルエステル単量体に由来する構成単位を含むことが好ましい。

本開示において「(メタ)アクリル酸アルキルエステル単量体に由来する構成単位」とは、(メタ)アクリル酸アルキルエステル単量体が付加重合して形成される構成単位を意味する。なお、特定(メタ)アクリル系樹脂粒子Aにおける「(メタ)アクリル酸アルキルエステル単量体」には、カルボキシ基を有する単量体に該当する単量体、及び、自己架橋性を有する単量体に該当する単量体は、包含されないものとする。

[0050] (メタ)アクリル酸アルキルエステル単量体の種類は、特に限定されない。

(メタ)アクリル酸アルキルエステル単量体は、アクリル酸アルキルエステル単量体であってもよく、メタクリル酸アルキルエステル単量体であって

もよい。

(メタ) アクリル酸アルキルエステル単量体が有するアルキル基は、無置換であってもよく、置換基（但し、カルボキシ基、自己架橋性基及び水酸基を除く。）を有していてもよいが、無置換であることが好ましい。

(メタ) アクリル酸アルキルエステル単量体が有するアルキル基は、直鎖状、分岐鎖状、又は環状のいずれであってもよい。

(メタ) アクリル酸アルキルエステル単量体が有するアルキル基の炭素数は、例えば、1～18であることが好ましく、1～12であることがより好ましく、1～8であることが更に好ましい。

[0051] (メタ) アクリル酸アルキルエステル単量体の具体例としては、メチル(メタ) アクリレート、エチル(メタ) アクリレート、*n*-ブチル(メタ) アクリレート、*i*-ブチル(メタ) アクリレート、*s*-ブチル(メタ) アクリレート、*t*-ブチル(メタ) アクリレート、*n*-オクチル(メタ) アクリレート、*i*-オクチル(メタ) アクリレート、2-エチルヘキシル(メタ) アクリレート、*n*-ノニル(メタ) アクリレート、*i*-ノニル(メタ) アクリレート、*n*-デシル(メタ) アクリレート、ステアシル(メタ) アクリレート、ラウリル(メタ) アクリレート、シクロヘキシル(メタ) アクリレート、及びイソボルニル(メタ) アクリレートが挙げられる。

(メタ) アクリル酸アルキルエステル単量体としては、例えば、*n*-ブチルアクリレート、メチルメタクリレート、及び2-エチルヘキシルアクリレートからなる群より選ばれる少なくとも1種が好ましい。

[0052] <その他の単量体に由来する構成単位>

特定(メタ) アクリル系樹脂粒子Aは、カルボキシ基を有する単量体、自己架橋性基を有する単量体、及び、(メタ) アクリル酸アルキルエステル単量体のいずれにも該当しない単量体（所謂、その他の単量体）に由来する構成単位を含んでいてもよい。

本開示において、「その他の単量体に由来する構成単位」とは、その他の単量体が付加重合して形成される構成単位を意味する。

[0053] その他の単量体に由来する構成単位としては、例えば、スチレンに由来する構成単位が挙げられる。特定（メタ）アクリル系樹脂粒子Aがスチレンに由来する構成単位を含むと、形成される接着被膜に光沢性を付与できる。

[0054] また、その他の単量体に由来する構成単位としては、例えば、ベンジル（メタ）アクリレート及びフェノキシエチル（メタ）アクリレートに代表される芳香族環を有する（メタ）アクリレートに由来する構成単位；メトキシエチル（メタ）アクリレート及びエトキシエチル（メタ）アクリレートに代表されるアルコシアルキル（メタ）アクリレートに由来する構成単位；アクリロニトリル及びメタクリロニトリルに代表されるシアン化ビニルに由来する構成単位；蟻酸ビニル、酢酸ビニル、プロピオン酸ビニル及びバーサチック酸ビニルに代表されるビニルエステルに由来する構成単位；等が挙げられる。

[0055] 特定（メタ）アクリル系樹脂粒子Aは、その他の単量体に由来する構成単位を含む場合、その他の単量体に由来する構成単位を1種のみ含んでいてもよく、2種以上含んでいてもよい。

[0056] 特定（メタ）アクリル系樹脂粒子Aがその他の単量体に由来する構成単位を含む場合、その他の単量体に由来する構成単位の含有率は、本開示のコーティング組成物の効果を損なわない範囲において、適宜設定できる。

[0057] <<特定（メタ）アクリル系樹脂粒子Aの含有率>>

特定（メタ）アクリル系樹脂粒子Aの含有率は、特に限定されないが、例えば、接着被膜に対して、85～95質量%であることが好ましく、87～93質量%であることがより好ましく、89～91質量%であることが更に好ましい。

[0058] [水溶性（メタ）アクリル系樹脂B]

接着被膜は、水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bを含む。

接着被膜は、水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bを1種のみ含んでいてもよく、2種以上含んでいてもよい。

[0059] ここで、「水溶性（メタ）アクリル系樹脂」とは、25℃の水への溶解度

が水100g当たり50mg以上の（メタ）アクリル系樹脂である。

[0060] <自己架橋性を有する単量体に由来する構成単位>

水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bは、自己架橋性を有する単量体に由来する構成単位を含んでもよい。

水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bが自己架橋性を有する単量体に由来する構成単位を含むと、高温での接着強度が優れる傾向にある。

なお、水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bは、自己架橋性を有する単量体に由来する構成単位を含まなくてもよい。つまり、水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bは、非架橋性の樹脂であってもよい。

[0061] 水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bにおける自己架橋性の具体例は、特定（メタ）アクリル系樹脂粒子Aにおける自己架橋性の具体例と同様である。

自己架橋性としては、N-メチロール基、N-ブチロール基、及びグリシジル基からなる群より選ばれる少なくとも1種が好ましい。

[0062] 水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bにおける自己架橋性を有する単量体の具体例は、特定（メタ）アクリル系樹脂粒子Aにおける自己架橋性を有する単量体の具体例と同様である。

自己架橋性を有する単量体としては、N-メチロールアクリルアミド（NMAM）、及び、ヒドロキシエチルアクリルアミド（HEAA）から選ばれる少なくとも1種が好ましい。

[0063] 水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bは、自己架橋性を有する単量体に由来する構成単位を含む場合、自己架橋性を有する単量体に由来する構成単位を1種のみ含んでもよく、2種以上含んでもよい。

[0064] 水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bが自己架橋性を有する単量体に由来する構成単位を含む場合、自己架橋性を有する単量体に由来する構成単位の含有率は、特に限定されないが、例えば、水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bの全構成単位に対して、0.1質量%～10.0質量%であることが好ましく、1.0質量%～5.0質量%であることがより好ましく、1.5質量%

～2. 0質量%であることが更に好ましい。

水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bにおける自己架橋性基を有する単量体に由来する構成単位の含有率が、水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bの全構成単位に対して上記範囲内であると、形成される接着被膜が、電磁鋼板同士を固着させる際の高温条件においてより高い接着力を示す傾向にある。

[0065] <水酸基を有する単量体に由来する構成単位>

水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bは、水酸基を有する単量体に由来する構成単位を含むことが好ましい。

本開示において「水酸基を有する単量体に由来する構成単位」とは、水酸基を有する単量体が付加重合して形成される構成単位を意味する。なお、本開示において、自己架橋性基の一部を構成する水酸基は、水酸基を有する単量体における水酸基には含まれないものとする。

[0066] 水酸基を有する単量体としては、例えば、1分子中に少なくとも1つの水酸基とエチレン性不飽和基とを有する単量体が挙げられる。

エチレン性不飽和基としては、特に限定されず、例えば、ビニル基、アリル基、ビニルフェニル基、（メタ）アクリルアミド基、及び（メタ）アクリロイル基が挙げられる。

エチレン性不飽和基としては、（メタ）アクリロイル基が好ましい。

[0067] 水酸基を有する単量体の具体例としては、2-ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート、2-ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、3-ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、4-ヒドロキシブチル（メタ）アクリレート、6-ヒドロキシヘキシル（メタ）アクリレート、10-ヒドロキシデシル（メタ）アクリレート、12-ヒドロキシラウリル（メタ）アクリレート、3-メチル-3-ヒドロキシブチル（メタ）アクリレート、1, 1-ジメチル-3-ヒドロキシブチル（メタ）アクリレート、1, 3-ジメチル-3-ヒドロキシブチル（メタ）アクリレート、2, 2, 4-トリメチル-3-ヒドロキシペンチル（メタ）アクリレート、2-エチル-3-ヒドロキシヘキシル（メタ）アクリレート、グリセリンモノ（メタ）アクリレート、

ポリプロピレングリコールモノ（メタ）アクリレート、ポリエチレングリコールモノ（メタ）アクリレート、及びポリ（エチレングリコール-プロピレングリコール）モノ（メタ）アクリレートが挙げられる。

水酸基を有する単量体としては、ヒドロキシアルキル（メタ）アクリレートが好ましく、炭素数が2～4のヒドロキシアルキル基を有するヒドロキシアルキル（メタ）アクリレートがより好ましく、2-ヒドロキシエチル（メタ）アクリレートが更に好ましく、2-ヒドロキシエチルメタクリレートが特に好ましい。

[0068] 水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bは、水酸基を有する単量体に由来する構成単位を含む場合、水酸基を有する単量体に由来する構成単位を1種のみ含んでいてもよく、2種以上含んでいてもよい。

[0069] 水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bが水酸基を有する単量体に由来する構成単位を含む場合、水酸基を有する単量体に由来する構成単位の含有率は、特に限定されないが、例えば、水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bの全構成単位に対して、5質量%～30質量%であることが好ましく、10質量%～25質量%であることがより好ましく、15質量%～25質量%であることが更に好ましい。

水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bにおける水酸基を有する単量体に由来する構成単位の含有率が、水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bの全構成単位に対して5質量%以上であると、外観、接着強度及び磁気特性が共に優れる傾向にある。

水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bにおける水酸基を有する単量体に由来する構成単位の含有率が、水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bの全構成単位に対して30質量%以下であると、水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bの製造安定性がより優れる傾向にある。

[0070] <（メタ）アクリル酸アルキルエステル単量体に由来する構成単位>

水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bは、（メタ）アクリル酸アルキルエステル単量体に由来する構成単位を含むことが好ましい。

なお、水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bにおける「（メタ）アクリル酸アルキルエステル単量体」には、自己架橋性基を有する単量体に該当する単量体、及び、水酸基を有する単量体に該当する単量体は、包含されないものとする。

[0071] （メタ）アクリル酸アルキルエステル単量体の種類は、特に限定されない。

（メタ）アクリル酸アルキルエステル単量体は、アクリル酸アルキルエステル単量体であってもよく、メタクリル酸アルキルエステル単量体であってもよい。

（メタ）アクリル酸アルキルエステル単量体が有するアルキル基は、無置換であってもよく、置換基（但し、カルボキシ基、自己架橋性基及び水酸基を除く。）を有していてもよいが、無置換であることが好ましい。

（メタ）アクリル酸アルキルエステル単量体が有するアルキル基は、直鎖状、分岐鎖状、又は環状のいずれであってもよい。

（メタ）アクリル酸アルキルエステル単量体が有するアルキル基の炭素数は、例えば、1～12であることが好ましく、1～8であることがより好ましく、1～4であることが更に好ましい。

[0072] 水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bにおける（メタ）アクリル酸アルキルエステル単量体の具体例は、特定（メタ）アクリル系樹脂粒子（A）における（メタ）アクリル酸アルキルエステル単量体の具体例と同様である。

（メタ）アクリル酸アルキルエステル単量体は、例えば、水溶性の観点から、n-ブチルアクリレート、メチルメタクリレート、及びエチルアクリレートからなる群より選ばれる少なくとも1種を含むことが好ましく、メチルメタクリレート及びエチルアクリレートから選ばれる少なくとも1種を含むことがより好ましく、メチルメタクリレートを含むことが更に好ましい。

[0073] 水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bは、（メタ）アクリル酸アルキルエステル単量体に由来する構成単位を含む場合、（メタ）アクリル酸アルキルエステル単量体に由来する構成単位を1種のみ含んでもよく、2種以上含む

でいてもよい。

[0074] 水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bが（メタ）アクリル酸アルキルエステル単量体に由来する構成単位を含む場合、水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bにおける（メタ）アクリル酸アルキルエステル単量体に由来する構成単位の含有率は、特に限定されないが、例えば、水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bの全構成単位に対して、40質量%～90質量%であることが好ましく、40質量%～80質量%であることがより好ましく、40質量%～70質量%であることが更に好ましい。

[0075] <その他の単量体に由来する構成単位>

水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bは、自己架橋性基を有する単量体、水酸基を有する単量体、及び、（メタ）アクリル酸アルキルエステル単量体のいずれにも該当しない単量体（所謂、その他の単量体）に由来する構成単位を含んでいてもよい。

[0076] その他の単量体に由来する構成単位としては、例えば、ベンジル（メタ）アクリレート及びフェノキシエチル（メタ）アクリレートに代表される芳香族環を有する（メタ）アクリレートに由来する構成単位；メトキシエチル（メタ）アクリレート及びエトキシエチル（メタ）アクリレートに代表されるアルコキシアルキル（メタ）アクリレートに由来する構成単位；アクリロニトリル及びメタクリロニトリルに代表されるシアン化ビニルに由来する構成単位；蟻酸ビニル、酢酸ビニル、プロピオン酸ビニル及びバーサチック酸ビニルに代表されるビニルエステルに由来する構成単位；等が挙げられる。

[0077] 水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bは、その他の単量体に由来する構成単位を含む場合、その他の単量体に由来する構成単位を1種のみ含んでいてもよく、2種以上含んでいてもよい。

[0078] 水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bがその他の単量体に由来する構成単位を含む場合、その他の単量体に由来する構成単位の含有率は、本開示のコーティング組成物の効果を損なわない範囲において、適宜設定できる。

[0079] <<水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bの含有量>>

接着被膜における水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bの含有量は、水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bの含有質量に対する特定（メタ）アクリル系樹脂粒子Aの含有質量の比〔特定（メタ）アクリル系樹脂粒子Aの含有質量／水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bの含有質量〕が $95/5 \sim 85/15$ が好ましい。

水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bの含有質量に対する特定（メタ）アクリル系樹脂粒子Aの含有質量の比が $95/5 \sim 85/15$ であると、外観、接着強度及び磁気特性が共に優れる傾向にある。これら観点から、水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bの含有質量に対する特定（メタ）アクリル系樹脂粒子Aの含有質量の比は、 $95/5 \sim 90/10$ であることが好ましい。

[0080] 〔その他の成分〕

接着被膜は、その効果を損なわない範囲において、必要に応じて、既述した成分以外の成分（所謂、その他の成分）を含んでいてもよい。

[0081] 接着被膜付き電磁鋼板や接着被膜付き電磁鋼板を積層して得られた積層コアにおける接着被膜は、赤外分光法や核磁気共鳴、ガスクロマトグラフィーにて含有成分を定性分析した上で、TOFMSによるフラグメントの重量分布を行うことで、成分比率を推定できる。

接着被膜付き電磁鋼板の分析用サンプルは、被膜部分を精密カッターで切り出すことで採取可能である。また、積層コアとなっている場合には、積層コアから電磁鋼板を数枚剥離させてから、上記手法にて採取する。

[0082] （接着被膜付き電磁鋼板の製造方法）

（接着被膜の形成方法）

本開示の接着被膜付き電磁鋼板は、製造方法に関わらず、上記の特徴を有していれば、その効果が発揮されるが、例えば、以下の工程を含む製造方法によって得られる。

（Ⅰ）電磁鋼板の片面又は両面の少なくとも一部に、接着被膜形成用塗工液を塗工して塗装鋼板を得る塗工工程。

（ⅠⅠ）前記塗装鋼板を、 $100 \sim 200^{\circ}\text{C}$ の乾燥温度まで $6.0^{\circ}\text{C}/\text{秒}$ 以

下の加熱速度で加熱し、前記乾燥温度～前記乾燥温度－10℃の温度域で10～60秒保持することで、乾燥させて、電磁鋼板の表面に接着被膜を形成する被膜形成工程。

なお、本開示において、接着被膜形成用塗工液中の各成分の量は、接着被膜形成塗工液中に各成分に該当する物質が複数存在する場合には、特に断らない限り、接着被膜形成用塗工液中に存在する上記複数の物質の合計量を意味する。

それぞれの工程について説明する。

[0083] 一塗工工程一

塗工工程では、電磁鋼板の片面又は両面の少なくとも一部に接着被膜形成用塗工液（以下「本開示の塗工液」または「本開示のコーティング組成物」とも称する）を塗工して塗装鋼板を得る。

[0084] 本開示の塗工液（コーティング組成物）は、（メタ）アクリル系樹脂粒子Aと、水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bと、水を含む媒体とを含む。

本開示の塗工液において、特定（メタ）アクリル系樹脂粒子Aは、水を含む媒体中に分散した状態で存在している。

また、水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bは、水を含む媒体中に溶解した状態で存在している。

このような塗工液を塗工した後に乾燥させることで、上述した本実施形態に係る接着被膜が得られる。

[0085] [水]

本開示の塗工液は、水を含む。

水の種類は、特に限定されない。

水としては、例えば、不純物が少ないという観点から、蒸留水、脱イオン水（「イオン交換水」ともいう。）、及び純水が好ましい。

[0086] 本開示の塗工液における水の含有率は、特に限定されないが、例えば、コーティング組成物の全質量に対して、35質量％～50質量％であることが好ましく、40質量％～45質量％であることがより好ましい。

[0087] [その他の成分]

本開示の塗工液は、その効果を損なわない範囲において、必要に応じて、既述した成分以外の成分（所謂、その他の成分）を含んでいてもよい。

[0088] その他の成分としては、例えば、水以外の水性媒体が挙げられる。

水以外の水性媒体としては、例えば、水混和性の有機溶剤が挙げられる。

水混和性の有機溶剤としては、例えば、メタノール、エタノール等の一価アルコール化合物；グリセリン、エチレングリコール、プロピレングリコール等の多価アルコール化合物；エチレングリコールモノエチルエーテル、プロピレングリコールモノブチルエーテル等のグリコール誘導体；などの有機溶剤が挙げられる。

また、その他の成分としては、例えば、防腐剤、濡れ剤、消泡剤等の各種添加剤が挙げられる。

[0089] (コーティング組成物のゲル分率)

本開示の塗工液は、例えば、特定（メタ）アクリル系樹脂粒子Aに含まれる自己架橋性基による架橋が進行する温度よりも高い温度におけるゲル分率が、特定（メタ）アクリル系樹脂粒子Aに含まれる自己架橋性基による架橋が進行する温度よりも低い温度におけるゲル分率よりも大きいことが好ましい。

本開示の塗工液のゲル分率が上記のような要件を満たすと、本開示の塗工液は、電磁鋼板の表面への優れた塗工と、電磁鋼板同士を接着させる際の高温条件で高い接着力を示す接着被膜の形成とをバランス良く両立できる傾向にある。

[0090] 本開示の塗工液のゲル分率は、上記接着被膜のゲル分率の測定方法において、測定対象をコーティング組成物とする以外は同様にして測定する。

[0091] [塗工液の製造方法]

本開示の塗工液（コーティング組成物）の製造方法は、特に限定されない。

本開示の塗工液は、例えば、特定（メタ）アクリル系樹脂粒子Aの分散液

及び水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bの水溶液を、混合することにより製造できる。

[0092] 混合方法は、特に限定されない。

混合方法としては、例えば、攪拌により混合する方法が挙げられる。

攪拌には、一般的な攪拌器具又は攪拌装置を使用できる。

攪拌温度は、特に限定されないが、例えば、20℃～30℃であることが好ましい。

[0093] ー接着被膜形成方法ー

被膜形成工程では、塗工液が塗工された電磁鋼板（塗装鋼板）を、100～200℃の乾燥温度（材料の最高到達温度）まで6.0℃/秒以下の加熱速度で加熱し、乾燥温度～（乾燥温度－10℃）の温度域で10～60秒保持することで、乾燥させて、電磁鋼板の表面に接着被膜を形成する。

乾燥時間（材料温度が乾燥温度－10℃～乾燥温度までの温度に保持される時間）は30～60秒とするのが好ましい。昇温速度は乾燥温度（材料の最高到達温度）になるまでの時間から計算する。

乾燥温度が200℃を超えると、硬化反応が進行し過ぎて接着強度が低下する場合がある。また、乾燥温度が高すぎると、樹脂が酸化してしまう場合がある。乾燥温度が100℃未満、または乾燥時間が10秒未満であると、十分に乾燥しない。

乾燥時間が60秒超であると、硬化反応が進行し過ぎて接着強度が低下する場合がある。

また、昇温速度が6.0℃/秒超であると、好適に製膜せず接着強度不足となる。一般には、昇温速度を遅くすると、炉長を長くしたり、ラインスピードを下げたりする必要が生じ、設備制約や生産性の点で好ましくないと考えられている。しかしながら、本実施形態に係る接着被膜付き電磁鋼板の製造方法においては、昇温速度を遅くすることで上記の効果が得られるとの新たな知見に基づいて、あえて昇温速度を遅くしている。

本開示の塗工液による接着塗膜の形成は、ロールコーター方式、スプレー

方式等の周知の塗工方法により、塗工液を電磁鋼板の表面に塗工した後、乾燥する方法が挙げられる。

塗工液の固形分濃度は5～40質量%が好ましく、10～25質量%がより好ましい。乾燥方式は、複写方式の加熱炉を利用した方式が好ましいが、熱風炉方式、その他の方式であってもよい。

[0094] [積層コア]

本開示の積層コアは、本開示の接着被膜付き電磁鋼板が複数積層され、接着被膜の硬化膜により電磁鋼板が互いに接着されている。

ここで、接着被膜の硬化膜とは、積層された接着被膜付き電磁鋼板が加熱及び加圧されることで、接着被膜中の（メタ）アクリル系樹脂粒子Aの架橋が進行して、硬化し、接着能を発現した膜である。

[0095] 具体的には、本開示の積層コアとしては、例えば、本開示の接着被膜付き電磁鋼板を打ち抜いて、打ち抜き部材を作製し、打ち抜き部材を積層一体化した積層コアが挙げられる。

[0096] 図2は、本開示の積層コアの一例を表す模式図である。図2に示すように、積層コア100は、8枚の接着被膜付き電磁鋼板の打ち抜き部材11を円環状に連結し、円環状に連結した打ち抜き部材11を8層に積層して一体化した積層体13として形成されている。

接着被膜付き電磁鋼板の打ち抜き部材11は、接着被膜付き電磁鋼板に打ち抜き加工が施され、円弧上のヨーク部17と、ヨーク部17の内周面から径方向内側に向かって突出しているティース部15とを備えている。

なお、積層コア100は、図2に示す積層コア100を形成する打ち抜き部材11の形状、個数、積層数などに限らず、目的に応じて設計すればよい。

[0097] (積層コアの製造方法)

本開示の積層コアは、例えば、次の各工程により製造する。

(111) 本開示の接着被膜付き電磁鋼板を打ち抜いて打ち抜き部材を得る打ち抜き工程。

(I V) 前記打ち抜き部材を、複数枚積層して積層体を得る積層工程。

(V) 前記積層体を、 $200 \sim 300^{\circ}\text{C}$ の温度域の加圧温度に加熱し、前記加圧温度～前記加圧温度－ 10°C の範囲で、 $0.5 \sim 10\text{MPa}$ の加圧力をかけたまま $30 \sim 60$ 分間保持する接着工程。

それぞれの工程について説明する。

[0098] ー打ち抜き工程ー

打ち抜き工程では、接着被膜付き電磁鋼板を打ち抜いて所定の形状を有する部材（打ち抜き部材）を得る。打ち抜き方法については限定されない。

[0099] ー積層工程ー

積層工程では、打ち抜き部材を、互いの電磁鋼板の間に接着被膜を介在させて積層する。これにより積層体を得る。

[0100] ー接着工程ー

接着工程では、積層体を、 $200 \sim 300^{\circ}\text{C}$ の温度域の加圧温度（材料の最高到達温度）に加熱し、前記加圧温度～前記加圧温度－ 10°C の範囲で、 $0.5 \sim 10\text{MPa}$ の加圧力をかけたまま $30 \sim 60$ 分間保持する。これにより、接着被膜中の（メタ）アクリル系樹脂粒子Aの架橋を進行させ、接着被膜を硬化させる。これにより、接着被膜の硬化膜が接着能を発現し、接着被膜の硬化膜により電磁鋼板が互いに接着される。

これらの操作により、本開示の積層コアが得られる。

接着被膜付き電磁鋼板は、互いの電磁鋼板の接着被膜の硬化膜が対面して互いに接着されていてもよいし、一方の電磁鋼板の接着被膜の硬化膜と、他方の電磁鋼板の接着被膜が形成されていない面とが対面して互いに接着されていてもよい。

加圧温度は、 $200 \sim 300^{\circ}\text{C}$ 、加圧力は $0.5 \sim 10\text{MPa}$ 、保持時間は $30 \sim 60$ 分が好ましい。

[0101] （接着被膜の硬化膜のゲル分率）

本開示の積層コアにおいて、接着被膜の硬化膜のゲル分率は、 70% 質量以上が好ましく、 85% 質量以上がより好ましく、 85% 質量以上がさらに

好ましい。

接着被膜の硬化膜のゲル分率を上記範囲とすると、接着強度及び磁気特性が共に優れる傾向にある。

ここで、接着被膜の硬化膜のゲル分率は70質量%以上である場合、接着被膜は、自己架橋性基を有する単量体として（メタ）アクリルアミド基を有する単量体に由来する構成単位を含む（メタ）アクリル系樹脂粒子A、及び水酸基を有する単量体に由来する構成単位を含む水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bを含む接着被膜であることが好ましい。

接着被膜の硬化膜のゲル分率は、接着被膜付き電磁鋼板にける接着被膜のゲル分率と同じ方法により測定する。

[0102] （積層コアの用途）

本開示の積層コアは、回転電機等に使用されるコア（つまり鉄心）に利用できる。

実施例

[0103] 以下、本開示のコーティング組成物を実施例により更に具体的に説明する。本開示はその主旨を越えない限り、以下の実施例に限定されるものではない。

[0104] [実施例1]

1. （メタ）アクリル系樹脂粒子Aの製造

ステンレス製の容器に、メチルメタクリレート〔MMA；メタクリル酸アルキルエステル単量体〕168質量部と、n-ブチルアクリレート〔n-B A；アクリル酸アルキルエステル単量体〕56質量部と、スチレン〔St；その他の単量体〕128質量部と、メタクリル酸〔MAA；カルボキシ基を有する単量体〕40質量部と、ヒドロキシエチルアクリルアミド〔HEAA；自己架橋性基を有する単量体〕8質量部と、を入れて混合し、単量体混合物を調製した。

次に、別のステンレス製の容器に、脱イオン水172.0質量部と、ノニオン性界面活性剤であるノイゲン（登録商標）EA-197D〔第一工業

製薬（株）〕 2.7 質量部、エマルゲン（登録商標） A-60〔花王（株）〕 4.1 質量部と、アニオン性界面活性剤であるネオペレックス（登録商標） G-65〔花王（株）〕 2.7 質量部と、を入れた後、攪拌して溶解させ、界面活性剤水溶液を調製した。

次に、界面活性剤水溶液に、上記に調製した単量体混合物を徐々に添加しながら、スターラーを用いて攪拌して乳化させ、プレエマルションを調製した。この調製したプレエマルションを重合に用いた。

重合は、7 L（リットル；以下、同じ。）容量のフラスコに、還流冷却管、攪拌装置、窒素ガス導入管、プレエマルション滴下用ポンプ〔商品名：ハイセラポンプ V-10、（株）イワキ製〕、及び、重合開始剤添加装置〔商品名：定量送液ポンプ MP-2000、東京理科機械（株）製〕を取り付け、恒温槽中で行った。具体的には、以下のようして重合を行った。

フラスコに、脱イオン水 162.4 質量部を入れた後、上記に調製したプレエマルションの一部（17.5 質量部）を加えた。フラスコ内に窒素ガスを流量 300 ml／分で吹き込み、任意の回転数〔標準条件：240 rpm（revolutions per minute；以下、同じ。）〕で攪拌しながら、フラスコの内温を任意の反応温度〔標準条件：62℃〕まで上昇させた。内温が安定した後、24 質量％ペルオキシ二硫酸アンモニウム水溶液〔重合開始剤〕 2.3 質量部、及び、20 質量％亜硫酸水素ナトリウム水溶液〔還元剤〕 2.3 質量部を加え、窒素ガスの流量を 50 ml／分に調節した。フラスコ内の温度上昇を確認した後、残りのプレエマルション（564 質量部）を 270 分かけて滴下するとともに、2.4 質量％ペルオキシ二硫酸アンモニウム水溶液〔重合開始剤〕 63.4 質量部、及び、2.0 質量％亜硫酸水素ナトリウム水溶液〔還元剤〕 63.4 質量部を 360 分かけて滴下した。ペルオキシ二硫酸アンモニウム水溶液及び亜硫酸水素ナトリウムの滴下終了から 30 分後に、6.9 質量％*t*-ブチルヒドロペルオキシド水溶液〔重合開始剤〕 6.4 質量部、及び、4.4 質量％ヒドロキシメタンスルフィン酸ナトリウム水溶液〔還元剤〕 6.4 質量部を 30 分かけて滴下した。プレエマルション

の滴下終了から150分経過後に30℃まで冷却することで重合反応終了とした。

重合反応により得られた乳化重合物に、防腐剤〔商品名：トップサイド 350、(株)パーマケム・アジア製〕1.3質量部、及び、濡れ剤〔商品名：サーフィノール(登録商標) 440、日信化学工業(株)製〕1.3質量部を添加し、(メタ)アクリル系樹脂粒子Aの水分散液を得た。

[0105] 2. 水溶性(メタ)アクリル系樹脂Bの製造

ステンレス製の容器に、メチルメタクリレート〔MMA；メタクリル酸アルキルエステル単量体〕126質量部と、アクリル酸〔AA；カルボキシ基を有する単量体〕60質量部と、エチルアクリレート〔EA；アクリル酸アルキルエステル単量体〕48質量部と、2-ヒドロキシエチルメタクリレート〔HEMA；水酸基を有する単量体〕60質量部と、ヒドロキシエチルアクリルアミド〔HEAA；自己架橋性基を有する単量体〕6質量部と、を入れて混合し、単量体混合物を調製した。

次に、別のステンレス製の容器に、脱イオン水121.0質量部と、アニオン性界面活性剤であるラテムル(登録商標) E-118B〔花王(株)〕4.5質量部と、を入れた後、攪拌して溶解させ、界面活性剤水溶液を調製した。

次に、界面活性剤水溶液に、上記に調製した単量体混合物を徐々に添加しながら、スターラーを用いて攪拌して乳化させ、プレエマルションを調製した。この調製したプレエマルションを重合に用いた。

重合は、7L容量のフラスコに、還流冷却管、攪拌装置、窒素ガス導入管、プレエマルション滴下用ポンプ〔商品名：ハイセラポンプ V-10、(株)イワキ製〕、及び、重合開始剤添加装置〔商品名：定量送液ポンプ MP-2000、東京理科機械(株)製〕を取り付け、恒温槽中で行った。具体的には、以下のようにして重合を行った。

フラスコに、脱イオン水415質量部と、アニオン性界面活性剤であるラテムル(登録商標) E-118B〔花王(株)〕7.0質量部と、を入れ

た後、上記に調製したプレエマルションの一部（8.5質量部）を加えた。フラスコ内に窒素ガスを流量300ml／分で吹き込み、任意の回転数〔標準条件：150rpm〕で攪拌しながら、フラスコの内温を任意の反応温度〔標準条件：60℃〕まで上昇させた後、69.0質量％*t*-ブチルヒドロペルオキシド水溶液〔重合開始剤〕1.0質量部、及び、10.0質量％ヒドロキシメタンスルフィン酸ナトリウム水溶液〔還元剤〕2.5質量部を加えた。内温が安定した後、窒素ガスの流量を50ml／分に調節した。調節後、残りのプレエマルション（456.6質量部）を180分かけて滴下するとともに、6.9質量％*t*-ブチルヒドロペルオキシド水溶液〔重合開始剤〕24.5質量部、1.2質量％ヒドロキシメタンスルフィン酸ナトリウム水溶液〔還元剤〕24.5質量部、及び、14.7質量％2-メルカプトエタノール〔連鎖移動剤〕39.6質量部を180分かけて滴下し、（メタ）アクリル系樹脂粒子の水分散液を得た。得られた（メタ）アクリル系樹脂粒子の水分散液に、25.0質量％アンモニア水（塩基性水溶液）58質量部を加えて（メタ）アクリル系樹脂粒子の水溶化を行い、水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bの水溶液を得た。

[0106] 3. 塗工液（コーティング組成物）の製造

（メタ）アクリル系樹脂粒子Aの水分散液300.0質量部（固形分として137.1質量部）と、水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bの水溶液48.1質量部（固形分として15.2質量部）と、を混合した後、適量の脱イオン水を加えて、固形分濃度が43.5質量％の塗工液を得た。

ここでいう「固形分濃度」とは、コーティング組成物に占める（メタ）アクリル系樹脂粒子A及び水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bの合計質量割合を意味する。以下において製造した塗工液についても同様である。

[0107] 4. 接着被膜付き電磁鋼板の作製

まず、質量％で、Si：3.0％、Mn：0.2％、Al：0.5％、残部がFe及び不純物からなる厚さ：0.25mm、幅：100mmの無方向性電磁鋼板を準備した。

次に、得られた塗工液を、電磁鋼板の片面全面に塗工した後、電磁鋼板を加熱炉内で3分間加熱して塗工膜を乾燥した。なお、加熱する際は、鋼板表面の到達温度（加熱温度）が140から170℃の範囲内となるまで電磁鋼板を加熱し、さらに到達温度で30秒間保持した。その後、冷却速度2.5℃/秒で電磁鋼板を室温まで冷却して、厚み2.5μmの接着被膜を形成した。

このようにして、接着被膜付き電磁鋼板を得た。

[0108] [実施例2～9、比較例1～7]

（メタ）アクリル系樹脂粒子A及び水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bの単量体組成をそれぞれ表1に示す単量体組成にしたこと、及び、（メタ）アクリル系樹脂粒子Aと水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bとの質量比〔A/B〕を表1に示す質量比にしたこと以外は、実施例1と同様の操作を行い、固形分濃度が43.5質量%のコーティング組成物を得た。

そして、得られた塗工液を用いて、実施例1と同様に、接着被膜付き電磁鋼板を得た。ただし、接着被膜のゲル分率が表1に示す値となるように、塗工膜の加熱温度、加熱温度、及び冷却速度を調整した。

なお、比較例5では、（メタ）アクリル系樹脂粒子Aを含まないコーティング組成物を得た。

また、比較例6では、水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bを含まないコーティング組成物を得た。

[0109] [比較例7]

塗工液として、ビスフェノールAとエピクロルヒドリンに潜在性硬化剤を混合したエポキシ樹脂組成物を用いた以外は、実施例1と同様に、接着被膜付き電磁鋼板を得た。

ただし、エポキシ樹脂組成物の塗工膜の加熱を鋼板表面の到達温度170℃で実施し、接着被膜の平均厚みを6μmとした。

[0110] [評価]

（ゲル分率）

各例の接着被膜付き電磁鋼板における接着被膜のゲル分率を、既述の方法に従って測定した。

各例の接着被膜付き電磁鋼板から、60 mm×60 mmサイズの単板試験片を2枚切り出した。そして、2枚の単板試験片を、互いの接着被膜を対面させて重ね合わせた。重ね合わせ体を、鋼板温度250℃、圧力3 MPa、加熱加圧時間60分の条件で、加熱加圧し、積層体サンプルを得た。積層サンプルにおける接着被膜の硬化膜のゲル分率を、既述の方法に従って測定した。

[0111] (接着強度)

各例の接着被膜付き電磁鋼板から、30 mm×60 mmサイズの単板試験片を2枚切出した。2枚の単板試験片における30 mm×10 mm分の端部を、互いの接着被膜を対面させて重ね合わせた。重ね合わせた2枚の単板試験片を、加圧温度250℃、圧力2 MPa、保持（加熱加圧）時間1分の条件で、加熱加圧し、接着強度測定用の接着板を得た。

[0112] 鋼板温度が常温（25℃）の状態、次の通り、剪断接着強度を測定した。接着強度測定用サンプルを、引張試験機に取り付け、引張速度50 mm／分で、剪断接着強度を測定した。

そして、得られた剪断接着強度の値を、2枚の単板試験片の接着面積で除した値を常温接着強度として求めた。

接着強度が、6 MPa以上であれば、十分な接着強度を有すると判断した。

[0113] また、別途、各例の接着被膜付き電磁鋼板から、30 mm×60 mmサイズの単板試験片を2枚切出し、30 mm×10 mm分の端部を、互いの接着被膜を対面させて重ね合わせた。重ね合わせた2枚の単板試験片を、150℃の雰囲気中に設置し、鋼板温度が150℃の状態、常温の場合と同じ条件で、剪断接着強度を測定した。

そして、得られた剪断接着強度の値を、2枚の単板試験片の接着面積で除した値を150℃接着強度として求めた。

接着強度が、0.5 MPa 以上であれば、十分な接着強度を有すると判断した。

[0114] また、さらに別途、各例の接着被膜付き電磁鋼板から、30 mm×60 mmサイズの単板試験片を2枚切出し、30 mm×10 mm分の端部を、互いの接着被膜を対面させて重ね合わせた。重ね合わせた2枚の単板試験片を、温度50℃、湿度85%の雰囲気中で、1週間放置した。その後、鋼板温度が常温（25℃）の状態、常温の場合と同じ条件で、剪断接着強度を測定した。

そして、得られた剪断接着強度の値を、2枚の単板試験片の接着面積で除した値を経時後常温接着強度として求めた。

接着強度が、5.5 MPa 以上であれば、十分な接着強度を有すると判断した。

[0115] (磁気特性)

各例の接着被膜付き電磁鋼板から、55 mm×55 mmサイズの単板試験片を切り出した。そして、2枚の単板試験片を、互いの接着被膜を対面させて重ね合わせた。重ね合わせ体を、加圧温度250℃、圧力2 MPa、保持（加熱加圧）時間1分の条件で、加熱加圧し、積層体サンプルを得た。

得られた積層サンプルにおける圧延方向と圧延直角方向の鉄損を、JIS C 2556:2015で定めた単板磁気測定法で測定し、圧延方向と圧延直角方向の鉄損W10/400の平均値を求めた。

鉄損が10.9 W/Kg 以下であれば、磁気特性に優れると判断した。

[0116] (外観)

各例の接着被膜付き電磁鋼板から、5 mm角の試験片を3つ切出し、試験片を得た。

各試験片の接着被膜表面を、走査型電子顕微鏡で倍率100倍にて3か所観察した。観察は、合計9視野である。

そして、下記評価基準で評価し、A及びBを合格とした。

A : 亀裂やヒビワレ、剥離等の被膜欠陥が全く見られなかった

- B : 被膜欠陥のある面積率が10%以下
C : 被膜欠陥の面積率が10%超え30%未満
D : 被膜欠陥の面積率が30%以上

[0117] 表1に記載の各単量体の略称の詳細は、以下に示すとおりである。

<自己架橋性基を有する単量体>

「NMAM」: N-メチロールアクリルアミド

「NBMA」: N-ブチロールアクリルアミド

<自己架橋性基及び水酸基を有する単量体>

「HEAA」: ヒドロキシエチルアクリルアミド

<カルボキシ基を有する単量体>

「MAA」: メタクリル酸

「AA」: アクリル酸

<水酸基を有する単量体>

「2HEMA」: 2-ヒドロキシエチルメタクリレート

<(メタ)アクリル酸アルキルエステル単量体>

「n-BA」: n-ブチルアクリレート

「MMA」: メチルメタクリレート

「2EHA」: 2-エチルヘキシルアクリレート

「EA」: エチルアクリレート

<その他の単量体>

「St」: スチレン

[0118] 表1中、単量体組成の欄に記載の空欄部は、その欄に該当する単量体を使用していないことを意味する。

表1中、単量体組成の欄に記載の数値は、いずれも固形分換算値（質量部）である。

[0119]

[表1]

	単量体	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	比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4	比較例 5	比較例 6
(メタ) アクリル系 樹脂粒子A	MMA	168	140	168	168	164	220	168	168	168	168	168	220	168		144
	n-BA	56		56	56		40	56	56	56			40	56		80
	St	128	128	128	128	128	128	128	128	128	136	136	128	128		128
	MAA	40	40	40	40	40	4	40	40	40	40	40	4	40		40
	2EHA		84			60					40	48				
	HEAA	8	8		8		8	8					8	8		8
水溶性(メタ) アクリル系 樹脂B	NMAM					8			8							
	NBMA			8						8	16	8				
	MMA	126	126	126	126	69	126	126	126	126	126	126	126	126	126	
	n-BA					60		60								
	AA	60	60	60	60	105	60	60	60	60	60	60	60	60	60	
	EA	48	48	48	48		48	54	48	48	48	48	48	48	48	
	2HEMA	60	60	60	60	60	60		60	60	60	60	60	60	60	
	NMAM															
	HEAA	6	6	6	6	6	6		6	6	6	6	6	6	6	
	A:Bの質量比	90:10	90:10	95:5	85:15	90:10	75:25	90:10	97:3	80:20	65:35	70:30	90:10	95:5	0:100	100:0

[0120]

[表2]

	接着被膜のゲル分率 (質量%)	接着被膜の硬化膜の ゲル分率 (質量%)	外観	接着強度 (Mpa)			磁気特性 鉄損 (W/kg)
				常温	150℃	経時後常温	
実施例1	50	85	B	12	4	10	10.5
実施例2	50	90	A	10	2	9.3	10.4
実施例3	70	85	B	12	3	11	10.7
実施例4	60	80	B	6	4.5	5.6	10.3
実施例5	50	80	B	8	3.5	7.5	10.9
実施例6	30	70	B	12	2	11.2	10.8
実施例7	70	85	B	7	2.2	6.5	10.8
実施例8	60	75	B	10	4	8	10.9
実施例9	60	75	B	8	5	6	10.9
比較例1	85	90	B	6	0.4	4.9	11.1
比較例2	75	85	B	16	1.2	13.5	12.8
比較例3	20	50	C	13	9.3	4.3	12.1
比較例4	10	40	B	4	2.2	3.8	10.8
比較例5	80	98	B	11	0.3	4.9	11.4
比較例6	60	95	D	7.3	4.4	4	10.7
比較例7	-	-	B	14	1	4.1	12.6

[0121] 上記結果から、本実施例では、比較例に比べ、外観、高温保管後の接着強度、及び磁気特性が共に優れることがわかる。

産業上の利用可能性

[0122] 本開示に係る上記態様によれば、常温および高温での接着強度、高温保管後の接着強度、ならびに磁気特性が共に優れた接着被膜付き電磁鋼板、及びそれを用いた積層コア、並びにこれらの製造方法が提供される。

符号の説明

- [0123] 1 0 接着被膜付き電磁鋼板
- 1 0 A 電磁鋼板
- 1 0 B 接着被膜
- 1 0 C 接着被膜
- 1 1 接着被膜付き電磁鋼板の打ち抜き部材
- 1 0 0 積層コア

請求の範囲

- [請求項1] 電磁鋼板と、
前記電磁鋼板の片面又は両面の少なくとも一部に設けられた接着被膜とを有し、
前記接着被膜は、
自己架橋性基を有する単量体に由来する構成単位を含む（メタ）アクリル系樹脂粒子A、及び水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bを含み、
前記接着被膜のゲル分率が、20質量％を超え70質量％以下である接着被膜付き電磁鋼板。
- [請求項2] 前記水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bは、自己架橋性基を有する単量体に由来する構成単位を含む（メタ）アクリル系樹脂である請求項1に記載の接着被膜付き電磁鋼板。
- [請求項3] 前記水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bの含有質量に対する前記（メタ）アクリル系樹脂粒子Aの含有質量の比が、95／5～85／15である請求項1に記載の接着被膜付き電磁鋼板。
- [請求項4] 前記自己架橋性基は、N－メチロール基、N－ブチロール基、グリシジル基、及びアルコキシメチルアミド基の1種以上である請求項1に記載の接着被膜付き電磁鋼板。
- [請求項5] 請求項1～請求項4のいずれか1項に記載された接着被膜付き電磁鋼板が複数積層され、前記接着被膜の硬化膜により前記電磁鋼板が互いに接着されている積層コア。
- [請求項6] 前記接着被膜は、前記自己架橋性基を有する単量体として（メタ）アクリルアミド基を有する単量体に由来する構成単位を含む前記（メタ）アクリル系樹脂粒子A、及び水酸基を有する単量体に由来する構成単為を含む前記水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bを含む接着被膜であり、かつ前記接着被膜の硬化膜のゲル分率は70質量％以上である請求項5に記載の積層コア。

- [請求項7] 請求項1に記載の接着被膜付き電磁鋼板の製造方法であって、
電磁鋼板の片面又は両面の少なくとも一部に、自己架橋性基を有する単量体に由来する構成単位を含む（メタ）アクリル系樹脂粒子A、及び水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bを含む、接着被膜形成用塗工液を塗工して塗装鋼板を得る塗工工程と、
前記塗装鋼板を、100～200℃の乾燥温度まで6.0℃/秒以下の加熱速度で加熱し、前記乾燥温度から前記乾燥温度－10℃の温度域で10～60秒保持することで乾燥させて、電磁鋼板の表面に接着被膜を形成する被膜形成工程と、
を有する、接着被膜付き電磁鋼板の製造方法。
- [請求項8] 前記接着被膜形成用塗工液が、前記水溶性（メタ）アクリル系樹脂Bの含有質量に対する前記（メタ）アクリル系樹脂粒子Aの含有質量の比が、95/5～85/15であることを特徴とする、請求項7に記載の接着被膜付き電磁鋼板の製造方法。
- [請求項9] 請求項5に記載の積層コアの製造方法であって、
前記接着被膜付き電磁鋼板を打ち抜いて打ち抜き部材を得る打ち抜き工程と、
前記打ち抜き部材を、複数枚積層して積層体を得る積層工程と、
前記積層体を、200～300℃の温度域の加圧温度に加熱し、前記加圧温度～前記加圧温度－10℃の範囲で、0.5～10MPaの加圧力をかけたまま30～60分間保持することで、前記接着被膜を硬化させて前記硬化膜を形成する接着工程と、
を有する、積層コアの製造方法。