

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2014-5160

(P2014-5160A)

(43) 公開日 平成26年1月16日(2014.1.16)

(51) Int.Cl.

**C04B 35/64 (2006.01)**

F I

C O 4 B 35/64

H

C O 4 B 35/64

B

テーマコード (参考)

審査請求 未請求 請求項の数 14 O L (全 14 頁)

(21) 出願番号 特願2012-140137 (P2012-140137)  
 (22) 出願日 平成24年6月21日 (2012. 6. 21)

(71) 出願人 000000158  
 イビデン株式会社  
 岐阜県大垣市神田町2丁目1番地  
 (74) 代理人 100090343  
 弁理士 濱田 百合子  
 (74) 代理人 100105647  
 弁理士 小栗 昌平  
 (74) 代理人 100105474  
 弁理士 本多 弘徳  
 (74) 代理人 100108589  
 弁理士 市川 利光  
 (72) 発明者 竹内 貞文  
 岐阜県大垣市青柳町300 イビデン株式  
 会社

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 黒鉛材の焼成に用いる器体、焼成容器、及び焼成方法

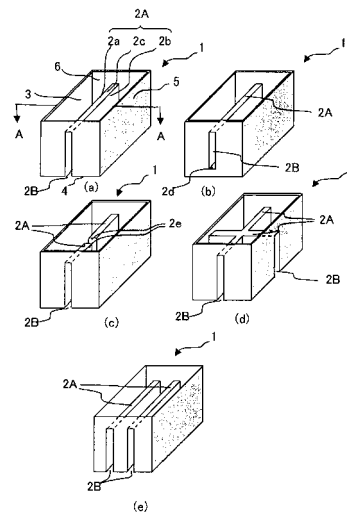
(57) 【要約】

【課題】 成形品（焼成品）を酸化させることなく、早く焼成することのできる焼成容器を提供すること。

【解決手段】 上方向に開口を有し、該開口に蓋を載せて収容部を閉鎖して、黒鉛材の焼成に用いられる器体であって、該器体は、該器体の底壁から連続して該収容部内に突出するように形成された凸部と、該凸部の突出に対応して形成された空間が設けられていることを特徴とする器体。

該空間から外気の熱が伝わり、黒鉛材が両面から加熱されるので割れにくくなり、昇温速度を速くできる。

【選択図】 図1



## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

上方向に開口を有し、該開口に蓋を載せて収容部を閉鎖して、黒鉛材の焼成に用いられる器体であって、

該器体は、該器体の底壁から連続して該収容部内に突出するように形成された凸部と、該凸部の突出に対応して形成された空間が設けられていることを特徴とする器体。

## 【請求項 2】

前記空間は、スリット状に形成されている、請求項 1 に記載の器体。

## 【請求項 3】

前記凸部は、平行な二側壁を含み、該二側壁の間に前記空間が設けられ、該二側壁の間隔を一定に保つ補強部材が入っている、請求項 1 又は 2 に記載の器体。 10

## 【請求項 4】

前記器体は金属製である、請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 項に記載の器体。

## 【請求項 5】

前記金属は、ステンレス鋼である、請求項 4 に記載の器体。

## 【請求項 6】

前記器体は直方体状である、請求項 1 ~ 5 のいずれか 1 項に記載の器体。

## 【請求項 7】

前記器体の外側面に、格子状に形成されリブからなる補強部を有する、請求項 1 ~ 6 のいずれか 1 項に記載の器体。 20

## 【請求項 8】

請求項 1 ~ 7 のいずれか 1 項に記載の器体と、蓋とからなり、

前記器体は、さらに前記開口の外周又は内周に沿って該蓋を支持する溝を有し、前記蓋は、前記溝に吻合する枠部を有することを特徴とする焼成容器。

## 【請求項 9】

前記溝は、内幅が 10 ~ 100 mm である、請求項 8 に記載の焼成容器。

## 【請求項 10】

前記溝は、深さが、10 ~ 150 mm である、請求項 8 又は 9 に記載の焼成容器。 30

## 【請求項 11】

請求項 8 ~ 10 のいずれか 1 項に記載の器体内に黒鉛材の成形体を置き、該器体の溝に前記蓋の枠部を沈めるよう閉鎖し、該溝には粉状又は粒状の充填材を充填し、該成形体を焼成することを特徴とする黒鉛材の製造方法。

## 【請求項 12】

前記溝に充填された充填材をさらに無機ペーストからなる被覆材で覆うことを特徴とする請求項 11 に記載の黒鉛材の製造方法。

## 【請求項 13】

前記被覆材はモルタルであることを特徴とする請求項 12 に記載の黒鉛材の製造方法。 40

## 【請求項 14】

前記焼成容器内の黒鉛材の成形体を、詰め粉に沈め焼成することを特徴とする請求項 1 ~ 13 のいずれか 1 項に記載の黒鉛材の製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

## 【0001】

本発明は、黒鉛材の焼成に用いる器体、焼成容器、及びそれを用いた黒鉛材の焼成方法に関する。

## 【背景技術】

## 【0002】

黒鉛材の製造は以下の工程に従って製造される。

- (1) 原材料コークスの粉碎原料を得る一次粉碎工程
- (2) ピッチと原材料コークスの混練物を得る混練工程
- (3) 混練物を粉碎し、成形原料を得る二次粉碎工程
- (4) 成形原料を成形し成形体を得る成形工程
- (5) 成形体を加熱することにより、揮発分を除去し焼成体を得る焼成工程
- (6) 焼成体を焼成工程よりも高い温度で熱処理し、黒鉛化する黒鉛化工程

焼成工程(5)は、ピッチ等のバインダーから、揮発分をゆっくり除去しながらバインダーを炭素化させる。バインダーは炭素化し黒鉛材の一部となる。バインダー及び粉碎原料の酸化を防止するために、成形体は、詰粉(パッキング材)を用いたり、焼成缶(焼成箱、焼成容器)に入れて焼成される。

10

#### 【0003】

特許文献1には、炭素材料(黒鉛材)の成形体を焼成炉で焼成するに際し、該成形体の周囲に詰粉を充填することなく焼成炉内を非酸化雰囲気保持して毎時10以上の昇温速度で該成形体を加熱し焼成することを特徴とする炭素材の製造方法が開示されている。

昇温速度は毎時10以上にするのは、成形体に変形が生じないようにするためであることが記載されている。

#### 【先行技術文献】

#### 【特許文献】

#### 【0004】

20

【特許文献1】特開昭60-54909号公報

#### 【発明の概要】

#### 【発明が解決しようとする課題】

#### 【0005】

黒鉛材の焼成工程では、揮発分を除去し、バインダーを炭素化するために高い温度で処理される。特許文献1に記載されるように、従来は黒鉛材の成形体の酸化を防止するために焼成容器が用いられている。

特許文献1では、さらに変形を防止するために昇温速度を毎時10以上と記載されているが、ここで用いられている成形体の体積は $2000\text{ cm}^3$ 前後の大きさである。

近年、黒鉛材の用途である単結晶引上装置ではシリコンウエハが大型化し、放電加工用電極では、樹脂バンパー金型製作用に用いられるなど、黒鉛材は大きなものが求められるようになっている。

30

このような要求から近年では、 $10^6\text{ cm}^3$ 程度の大きさの黒鉛材も製作されるようになってきている。特許文献1に記載される焼成速度は、このような大きな黒鉛材を焼成するには速すぎ、成型体内部に発生する温度差が熱応力差、成形品の寸法収縮、成形品からの大量の分解ガスの発生によって割れやすくなり容易に焼成することができない。

このような理由から、近年の大きなサイズの黒鉛材の成形品では、焼成容器に詰め粉を入れ、割れないようゆっくり温度を上げるように昇温速度が設定される。焼成容器に詰め粉、昇温速度を遅くすると割れにくくなるものの、全体の熱容量が大きくなる程焼成に時間がかかるため、生産性、エネルギー効率が悪くなる弊害がある。

40

本発明では、昇温速度を速くすることができる黒鉛材の焼成に使用する器体、焼成容器、及びそれを用いた黒鉛材の焼成速度を速くすることができる製造方法を提供することを目的とする。

#### 【課題を解決するための手段】

#### 【0006】

本発明は、上方向に開口を有し、該開口に蓋を載せて収容部を閉鎖して、黒鉛材の焼成に用いられる器体であって、該器体は、該器体の底壁から連続して該収容部内に突出するように形成された凸部と、該凸部の突出に対応して形成された空間が設けられていることを特徴とする器体である。この発明は、以下の態様が好ましい。

- 1 a) 前記空間は、スリット状に形成されていること

50

2 a) 前記凸部は、平行な二側壁を含み、該二側壁の間に前記空間が設けられ、該二側壁の間隔を一定に保つ補強部材が入っていること

3 a) 前記器体は金属製であること

4 a) 前記金属は、ステンレス鋼であること

5 a) 前記器体の外側面に、格子状に形成されリブからなる補強部を有すること

また、本発明の焼成容器は、前記記載の器体と、蓋とからなり、前記器体は、さらに前記開口の外周又は内周に沿って該蓋を支持する溝を有し、前記蓋は、前記溝に吻合する枠部を有することである。この発明は、以下の態様が好ましい。

1 b) 前記溝は、内幅が10～100mmであること

2 b) 前記溝は、深さが、10～150mmであること

さらに本発明の製造方法は、前記記載の器体内に黒鉛材の成形体を置き、該器体の溝に前記蓋の枠部を沈めるよう閉鎖し、該溝には粉状又は粒状の充填材を充填し、該成形体を焼成することを特徴とする黒鉛材の製造方法であることである。この発明は、以下の態様が好ましい。

1 c) 前記溝に充填された充填材をさらに無機ペーストからなる被覆材で覆うこと

2 c) 前記被覆材はモルタルであること

3 c) 前記焼成容器内の黒鉛材の成形体を、詰め粉に沈め焼成すること

【発明の効果】

【0007】

本発明の器体、焼成容器は、器体の底壁から連続して収容部内に突出するように形成された空間を有するので該空間を通して外気の熱が伝わり、黒鉛材を両面から加熱させることができる。このため割れにくくなり、昇温速度を速くできる。また、複数の黒鉛材を1つの器体に入れることができるので、個々に器体に黒鉛材を入れる場合に比べ、焼成容器内に入った外気の濃度が高まりにくくすることができ、黒鉛材の酸化をしにくくすることができる。このため本発明は、簡明な手段により構成でき、しかも品質の優れた黒鉛材を低コストで提供できる。

【図面の簡単な説明】

【0008】

【図1】図1(a)～図1(e)は、各々、本発明の実施形態の器体を説明する斜視図である。

【図2】図2(a)は、図1(a)の器体のA-A線に沿った断面を模式的に示す図である。同図の線は所定の厚みを有する板材の断面を示している。(b)は(a)の器体の使用状態の一例を示す模式図である。

【図3】本発明の他の実施形態の器体の斜視図である。

【図4】図3の器体に蓋(図3では不図示)を備えさせた焼成容器のB-B線に沿った断面を蓋とともに模式的に示す図である。図4は、垂面による断面を示すが、線は所定の厚みを有する板材の断面を示している。

【発明を実施するための形態】

【0009】

本発明において、焼成容器は、器体と蓋とからなり、器体とは、黒鉛材の成形体を収容する所定厚みの壁からなる部材を示し、蓋とは、前記器体に被せて使用する部材を示す。本発明の器体と蓋とを一体的に使用した焼成容器によって、外気(酸化性気体)の侵入を防止し、内容物である黒鉛材の成形体の酸化を防止するよう機能する。

本発明は、上方向に開口を有し、該開口に蓋を載せて収容部を閉鎖して、黒鉛材の焼成に用いられる器体であって、該器体は、該器体の底壁から連続して該収容部内に突出するように形成された凸部と、該凸部の突出に対応して形成された空間が設けられていることを特徴とする。

この器体は、黒鉛材の収容部を有し、開口を蓋により塞ぐことにより閉鎖された空間を形成する。

以下、器体又は焼成容器の内部を「内」、器体又は焼成容器の外部を「外」の用語を用

10

20

30

40

50

いて示す。

この器体は、該器体の底壁から連続して該収容部内に突出するように形成された凸部と、該凸部の突出に対応して形成された空間が設けられている。この凸部は、該空間を規定するとともに収容部の一部を構成する壁として機能する。以下、この空間を凹部ともいう。この凹部は、曲面で構成されていても、平面で構成されていても、その併用でもよい。また、凹部は、連続した空間であっても、不連続な空間であってもよいが、温度制御の観点から前者が好ましい。

前記凸部の外表面は凹部（空間）を形成するとともに器体外部の空間と連通（接触）し熱を器体内部に伝える機能を有し、該凸部の内表面は、該器体内部の空間に連通（接触）し、該熱を器体内部に伝える機能を有するとともに該収容部の一部を形成する要素となっ

10

ている。以上の収容部の空間構造により、収容部に載置された黒鉛材は、凸部と、凸部以外の器体の壁との両方から熱がより均等に効果的に伝わるので、黒鉛材の内部に温度差がつきにくく、上記効果を発揮することができる。

この器体の収容部は、底壁と側壁とからなり、側壁は、該凸部の一部を構成する第一の側壁と、該凸部の一部を構成しない第二の側壁とからなることが好ましい。

そして、前記凸部は、黒鉛材が載置される収容部を構成する壁要素であるとともに少なくとも2以上の部屋に分ける機能を有することが好ましい。

本発明に用いられる凹部又は凸部は、器体に複数設けることもできる。

#### 【0010】

本発明の凹部（空間）は、スリット状に形成されていることが好ましい。凹部が器体の底壁からスリット状に形成されていることにより、スリットの底から側方に流れる気流を形成することができるので、凸部の第一の側面と外気との熱交換を効率良く行うことができる。

20

#### 【0011】

本発明の凸部は、平行な二側壁を含み、該二側壁の間に凹部（空間）が設けられ、該二側壁の間隔を一定に保つ補強部材が入っていることが好ましい。このような凸部は、器体の下側を二つに分割乃至仕切る。このため、器体の凸部には、応力がかかりやすくなる。このため、補強部材を入れることにより、凸部にかかる応力を小さくすることができる。この補強部材は、凹部の底から側方へ繋がる流路を形成するように部分的に形成されていることが好ましい。部分的に形成されていることにより、底から側方へ流れる気流を形成

30

#### 【0012】

また、本発明の焼成容器（器体、蓋）の構成材料、全体形状は、上記溝が形成可能で、黒鉛材の焼成が可能な耐熱性、機械的強度が確保されるのであれば、基本的に任意である。

上記構成材料としては、金属製が好ましい。

黒鉛材は、サイズが大型化し、焼成容器もそれ以上に大きなものが必要となる。

金属製は、溶接等で一体的に構成することが出来、溶接部など継ぎ目部分の強度が高いので、高い外気の遮断性と高強度の焼成容器を同時に得ることが、凸部、凹部などの複雑な形状を容易に得ることができる。

40

また、焼成容器には、加熱、冷却により繰り返し熱歪みがかかる。焼成容器が金属製であると金属は弾性変形、塑性変形が容易にできるので割れにくくすることが出来る。

該金属としては、鉄、タングステン、白金、銅及び銅合金、アルミニウム及びアルミニウム合金、ステンレス鋼等が挙げられ、特にステンレス鋼が好ましい。ステンレス鋼としてはSUS304、SUS316などが利用できる。ステンレス鋼は、酸化皮膜を形成するので燃焼炉など酸化性雰囲気下で用いても表面の酸化の進行を遅くすることができ、器体の寿命をのばすことができる。

また、構成材料の厚みも基本的に任意であるが、金属製の場合、通常、3～15mmが好ましい。3mm以上であると高強度の器体得られ、15mm以下であると器体全体の重量を軽くすることができる。

50

## 【0013】

本発明の焼成容器あるいは器体の全体形状は、上述のように任意であり、焼成の繰り返しによる収容部の構造に悪影響を与えないのであれば、特に制限はないが、通常、単純な三次元構造であることが、取り扱い性、設計性、コスト性等の観点から好ましい。該三次元構造としては、角柱、円柱等の柱体が挙げられ、凸部あるいは凹部を有していても複数の黒鉛材を効率良く詰められるため直方体状が好ましい。

## 【0014】

また、本発明の器体の外側面に、格子状に形成されリブからなる補強部を有することが好ましい。リブとは、幅30～80mm程度の金属製のフラットバーを外側面に略垂直となるように溶接し形成されたものである。格子の大きさは特に制限はないが、例えば一辺が50～300mmである。補強部の構造に特に制限はないが、金属製板材等により前記外側面に前記形状になるように溶接等で結合される。焼成時、焼成容器の内部は、還元性雰囲気曝され、外部は酸化性雰囲気が許容されている。使用を繰り返すと内表面は浸炭し外表面は酸化する傾向にある。このため熱膨張差が生じるためそりが生じやすい。補強部があると、そりが生じても1つの格子の中で変形するだけであるので、焼成容器全体に至るほどの変形が生じにくいという効果がある。反りは平面部分で発生しやすいので、側壁が平面で構成される直方体状の器体において特に有効である。

## 【0015】

本発明の焼成容器は、前記記載の器体と、蓋とからなり、前記器体は、さらに前記開口の外周又は内周に沿って該蓋を支持する溝を有し、前記蓋は、前記溝に吻合する枠部を有することが好ましい。

蓋の構造、形状は、器体の開口の覆う機能を有する枠部を有するものであれば、基本的に任意である。枠部は、溝の中に落とし込むようにすることができる。

例えば、枠部は、平板状の材料の外延が垂直方向に折れ曲がるように蓋の天板の周囲に連続的に設けられていてもよいし、蓋の天板の内部領域に溶接等により設けられていてもよい。

本発明に用いられる溝は、粉状又は粒状の充填材を保持する機能と、蓋を保持することにより開口を閉鎖する機能とを有する。本願明細書において、粉状とは、平均円相当径が0.1mm未満のものを言い、粒状とは、平均円相当径が0.1～20mmのものを言う。

平均円相当径とは、投影面積円相当径を示し、粒子の投影面積と同じ面積を持つ円の直径を示す。

本発明に用いられる溝は焼成時に蓋の枠部を沈ませ、さらに全部、又は少なくとも一部に粉状又は粒状の充填材を保持することができる。このように溝に充填された充填材は、気体の拡散速度を遅くすることができるので、焼成容器外部の酸化性ガスを侵入しにくくすることができる。また、焼成容器内部に加熱により非酸化性ガスを生成するガス発生体を備えることを併用することにより、焼成缶の内圧を高くすることが出来るので、さらに酸化性ガスを侵入しにくくすることができる。

以下に焼成の昇温過程の方が降温過程よりも酸化に対して過敏であり、ガス発生体が有効に作用することを説明する。

黒鉛材は、焼成前の成形体段階では、強度が弱く、熱伝導率が低く、加熱過程での焼成収縮が大きいのでゆっくり昇温を行う。最高温度に到達した後の黒鉛材の焼成体は、強度及び熱伝導率が高くなるうえに、冷却過程での熱収縮量は小さいので、速やかに冷却することができる。また、昇温過程ではバインダーが酸素と結びつきやすい有機物として存在し、焼成後の冷却過程ではバインダーが炭素化し、酸素との反応性は小さくなっている。すなわち、昇温過程と冷却過程との反応性及び昇温又は冷却に要する時間の比較より特に昇温過程での黒鉛材の酸化を防止することが重要である。前記のガス発生体は、昇温過程で焼成容器の内圧を高くするので、黒鉛材の酸化防止に有効に機能する。

## 【0016】

焼成時を包含する上記枠部と溝の嵌合関係は、基本的に開口を覆う機能が発揮されれば

特に制限はない。枠部と溝との嵌合関係は、遊びが存在するように設計されることが好ましい。また、枠部の端部が溝底部の表面に接触していても、そうでなくともよい。また、この場合、枠部と側壁の端部とが接触していても、そうでなくともよいが、接触していない方が望ましい。接触していないと、焼成容器は繰り返し使用すると熱変形しても、蓋が閉まりにくくなりにくいからである。

**【0017】**

本発明では、器体の収容部に黒鉛材が置かれ、蓋を被せて焼成されるが、この溝に蓋の枠部を沈ませることより蓋の閉鎖性を高めることができ、上記酸化性気体の侵入を防止する効果を発揮することができる。

**【0018】**

本発明において、溝の空間形状、及びそれを構成する材料の形状は基本的に上記機能が発揮できるのであれば基本的に任意である。

溝は、幅と深さを備える。該幅と深さは、上述のように溝底部と溝側部の構造と材料厚等により決定される。該幅と深さは、温度変化の繰り返しにより焼成容器が変形しても、溝の構造に悪影響を与えないのであれば、特に制限はないが、通常、各々、一定である幅あるいは深さであることが、取り扱い性、設計性、コスト性等の観点から好ましい。該幅とは、溝側部間の内側の距離であり、該深さとは、溝底部の内面から溝開口までの距離である。

上記幅は、10～100mmが好ましい。10mm未満であると、蓋がわずかに熱変形しても蓋が収まりにくくなる傾向があり、器体を長く使えない場合がある。100mmを超えると器体の外寸が大きくなり、焼成炉への詰め効率が悪くなる。

上記深さは、10～150mmが好ましい。10mm未満であると、充填材が酸化あるいは移動などでこぼれて量が減ると、焼成容器内部に外気が侵入しやすくなる傾向がある。150mmを超えると充填材の外気遮断性の有効性が一定となり、詰め粉が無駄になる。また150mmを超えると、溝内部に異物などが落下したとき取り除きにくくなり、異物が残ったまま蓋を載せると、蓋が完全に閉まらず外気遮断性が悪くなる。

**【0019】**

また、本発明において、黒鉛材とは、通常、炭素材料から成形された成形体が包含され、該成形体の焼成品が黒鉛化可能なものであれば特に限定されるべきものではない。また、本発明の焼成容器は、黒鉛材の焼成に好適であるが、この焼成容器に供し得るものであれば特に黒鉛材に限定されず、任意の材料の焼成に用いることができる。

**【0020】**

本発明の焼成方法は、本発明の器体内に黒鉛材の成形体を置き、該器体の溝に前記蓋の枠部を沈めるよう閉鎖し、該溝には粉状又は粒状の充填材を充填し、該成形体を焼成することを特徴とする黒鉛材の製造方法である。

本発明の製造方法において、焼成容器は、器体と蓋とからなり、器体とは、黒鉛材の成形体を収容する部材を示し、蓋とは、前記器体に被せて使用する部材を示す。本発明の器体と蓋とを一体的に使用した焼成容器によって、外気（酸化性気体）の侵入を防止し、内容物である黒鉛材の成形体の酸化を防止するよう機能する。

本発明の製造方法の器体は、上方向に開口を有し、該開口に蓋を載せて収容部を閉鎖して、黒鉛材の焼成に用いられる器体であって、該器体は、該凹部（空間）を有する。

本発明の製造方法に用いられる器体の溝は、粉状又は粒状の充填材を保持する機能と、蓋を保持することにより開口を閉鎖する機能とを有する。

本発明の製造方法は、器体の溝に蓋を被せ、さらに溝の全部、又は少なくとも一部には粉状又は粒状の充填材を充填する。このような充填材は、気体の拡散速度を遅くすることができるので、焼成容器外部の酸化性ガスを侵入しにくくすることができる。

本発明の製造方法の、粉状又は粒状の充填材としては、どのようなものでも利用することができる。粉状、あるいは粒状に粉砕したコークス、粉状、あるいは粒状に粉砕した各種セラミックなどが利用できる。砂、礫などでも良い。

**【0021】**

本発明の製造方法は、充填材をさらに無機ペーストからなる被覆材で覆うことが望ましい。

また、被覆材を充填材に適用する方法に制限はないが、具体的には、蓋に備えた枠部を器体の溝に適合するように置くことにより閉鎖し、その後、溝に充填材を枠の端部が隠れるように入れ、充填材を被覆材で覆う。あるいは、溝に充填材を入れ、蓋をした後、所望により、更に充填材を溝と蓋の枠部の隙間にいれ、その後、被覆材で覆う。

被覆材で覆うことにより、焼成炉内を循環する気流によって、充填材が飛散しないようにすることができる。また、充填材にコークスなど可燃物を使用した場合には、直接焼成容器の外気が当たらないようにすることが出来るので、コークスの酸化消費を少なくすることができる。被覆材に特に制限はないが、例えば、モルタル、又はシリカ、アルミナ、ジルコニア、炭化珪素などの粉体、リン酸アルミニウム等の無機バインダー、及び水、エタノール等の液体を含むもの等が例示できる。

中でもモルタルを使用することが望ましい。モルタルは、容易に入手でき、焼成後に固化するので、充填材が、酸化あるいは飛散しないようにする効果が高い。また、モルタルは焼成後に固化するのでふるい分けすることにより容易に分離することができ、充填材を再利用しやすい。

#### 【0022】

本発明の製造方法は、焼成容器内の黒鉛材の成形体を詰め粉に沈め焼成することが望ましい。黒鉛材の成形体を詰め粉に沈めることにより、焼成容器の外部の酸化性ガスが焼成容器内部に侵入しても黒鉛材の成形体に到達しにくくなり、黒鉛材を酸化しにくくすることができる。

詰め粉は、器体の溝に充填する充填材と同一であっても異なっていても良い。充填材と詰め粉との組み合わせは回収時に混合しても支障がないよう同一であることがより好ましい。詰め粉は、充填材と同じく、粉状、あるいは粒状に粉碎したコークス、粉状、あるいは粒状に粉碎した各種セラミックなどが利用できる。砂、礫などが利用できる。

#### 【0023】

本発明の製造方法は焼成容器内に、加熱により非酸化性ガスを生成するガス発生体を備えることが好ましい。

本発明の製造方法は、焼成時、収容部には酸素ができる限り少ないことが好ましい。従って、焼成時、収容部は、非酸化性ガス、例えば、酸素以外のガス分子で置換されるようにすることが好ましい。非酸化性ガスとしては、水素、一酸化炭素、炭化水素などの還元性ガスあるいは窒素、アルゴンなど不活性ガスが利用できる。これらの非酸化性ガス雰囲気は、焼成容器内に加熱により非酸化性ガスを生成するガス発生体を備えることにより得ることができる。このようなガス発生体としては、生コークス、硬ピッチ、タールなどの石炭あるいは石油関連製品、紙、木材、パルプなど天然繊維、各種合成樹脂、等が挙げられる。これらのガス発生体は加熱によって、水素、一酸化炭素、二酸化炭素、炭化水素ガスを発生する。

このほかに、加熱により二酸化炭素を生成する炭酸水素ナトリウム、炭酸カルシウムなどが挙げられる。また、加熱により窒素ガスを生成するアジ化ナトリウムなども利用することができる。

中でも、生コークス、硬ピッチ、タールなどの石炭あるいは石油関連製品、紙、木材、パルプなど天然繊維、各種合成樹脂などの有機物をガス発生体として利用することが好ましい。これらの有機物は、残渣が炭素質であるので、焼成容器を腐食したりしないので好ましい。中でも特に生コークス、硬ピッチ、タールなどの石炭あるいは石油関連製品は、多くの物質の混合物であるので熱分解する温度域が広くガス発生体として好適に利用できる。

#### 【0024】

本発明の製造方法は、器体の溝と蓋とにより焼成容器が閉鎖されるので、焼成時、黒鉛材、及びガス発生体から発生する非酸化性ガスにより、焼成容器内は外気に対してプラス圧となり、大気など酸化性ガスが焼成容器へ拡散することを有効に防止する。

焼成の昇温過程の方が降温過程よりも酸化に対して過敏であり、ガス発生体が有効に作用することは、上述したとおりであるが、ここに繰り返す。

黒鉛材は、焼成前の成形体段階では、強度が弱く、熱伝導率が低く、加熱過程での焼成収縮が大きいのでゆっくり昇温を行う。最高温度に到達した後の黒鉛材の焼成体は、強度及び熱伝導率が高くなるうえに、冷却過程での熱収縮量は小さいので、速やかに冷却することができる。また、昇温過程ではバインダーが酸素と結びつきやすい有機物として存在し、焼成後の冷却過程ではバインダーが炭素化し、酸素との反応性は小さくなっている。昇温過程と冷却過程との反応性及び昇温又は冷却に要する時間の比較より特に昇温過程での黒鉛材の酸化を防止することが重要である。前記のガス発生体は、昇温過程で焼成容器の内圧を高くするので、黒鉛材の酸化防止に有効に機能する。

10

#### 【0025】

本発明の製造方法は、本発明の焼成容器（器体及び蓋）を黒鉛材の焼成に用いることが最も重要であり、焼成時の焼成炉内、及び焼成容器内における温度、黒鉛材等からの発生ガス、酸素濃度等のガス組成、各ガス分圧等は、基本的に任意であり、黒鉛材の組成、所望の焼成品の品質等を勘案して適宜、設定し得る。

上記焼成炉としては、基本的に焼成容器を出し入れ可能な空間、及び加熱手段を有していれば特に制限されるべきではなく、所望により、温度、ガス圧力等の制御手段を備えたものが挙げられる。

#### 【0026】

焼成容器は、焼成時、蓋をすることにより密閉されるが、その蓋の構造と密閉の態様に特に制限はないことは、上述のとおりである。

20

更に、溝に充填材を充填した後、充填材を被覆材で覆うことにより更に酸化性ガスの収容部への拡散を抑制し、収容部の非酸化性雰囲気効果を効果的に維持することができる。上記被覆材での被覆は、露出した詰め粉の外気との境界領域の全部であっても一部であってもよい。

#### 【0027】

以下、図を参照して、本発明の実施形態を具体的に説明するが、これに限定されないことは上記により明らかである。

本発明の器体1は、凸部2A、凹部（空間）2Bを有し、収容部3、底壁4、第2の側壁5、及び開口6を備える、所望の厚みの板材により形成されている。図1(a)及び図2(a)に示す器体1は、該器体1の底壁4から連続して該収容部3内に突出するように形成された凸部2Aと、該凸部2Aの突出に対応して形成された凹部（空間）2Bが設けられ、該凹部（空間）2Bは、スリット状に形成されている。凸部2Aは、第1の側壁2a、2b、並びにこれら側壁に垂直な壁2cを含んでなる。これら3壁は、器体1内部又は器体1外部に連通（接触）する壁を表し、一定の厚みを有して器体1の一部を形成し、底壁4、第2の側壁5とともに収容部3を形成するとともに凸部2A、及び凹部（空間）2Bを形成している。器体1は、凸部2A、及び凹部（空間）2Bの存在によって、1個の収容部が2個以上の収容部に分割乃至仕切られる（図1(a)、(b)では2個の収容部、(c)では2乃至4あるいは5個の収容部、(d)では4個の収容部、(e)では3個の収容部）。なお、底壁4、第2の側壁5も凸部2Aと同様の器体1内部又は器体1外部に連通（接触）する壁であることは明らかである。黒鉛材は、通常、1個の収容部に1個置かれるが、黒鉛材の形状、部屋の形状に応じて1個の収容部に複数の黒鉛材を置くこともできる。

30

40

#### 【0028】

図1(b)の凸部2A、及び凹部（空間）2Bは、図1(a)の凸部2A、及び凹部（空間）2Bの底壁4方向が空間であるのに対して壁2dで形成されたものとなり、壁2dの器体内部に連通する面と底壁4の器体内部に連通する面との間の空間は収容部3の一部となっている点で相違する。

図1(c)の凸部2A、及び凹部（空間）2Bは、図1(a)の凹部（空間）2Bが連続した空間であるのに対して2つの壁2eにより2つの空間（凹部（空間）2B）が形成

50

されている点で相違する。壁 2 e の構成、機能は、上記 2 d 等と同様である。

図 1 ( d ) の凸部 2 A、及び凹部 ( 空間 ) 2 B は、図 1 ( a ) の凸部 2 A、及び凹部 ( 空間 ) 2 B を他の第 2 の側壁 5 に同様に形成したもので該収容部 3 を 4 つとしたものである。交差する 2 つの凹部 ( 空間 ) 2 B は、連続した空間であっても、交差部で互いに断続した空間であってもよい。

図 1 ( e ) の凸部 2 A、及び凹部 ( 空間 ) 2 B は、図 1 ( a ) の凸部 2 A、及び凹部 ( 空間 ) 2 B を平行に 2 個形成し、該収容部 3 を 3 個有する。このようなことは、図 1 ( b ) ~ ( d ) についても同様であり、あるいは図 1 ( a ) ~ ( d ) の態様から適宜選択し、併用することもできる。

上記器体 1 は、上述のように凹部 ( 空間 ) 2 B が形成されているので、器体外部の気流が凹部で対流しやすく、器体の第 1 の側壁 2 a、2 b と、第 2 の側壁 5 に両方から加熱されるので、黒鉛材への伝熱がスムーズにできる。

#### 【 0 0 2 9 】

図 2 ( a ) は、図 1 ( a ) の器体の A - A 線に沿った断面を模式的に示す図であり、同図の線は所定の厚みを有する板材の断面を示している。図 2 ( a ) において、本発明の器体 1 は、上述のように凸部 2 A、及び凹部 ( 空間 ) 2 B を有し、収容部 3、底壁 4、第 2 の側壁 5、及び開口 6 を備える、所望の厚みの金属製板材により形成されている。

凸部 2 A は、第 1 の側壁 2 a、2 b、壁 2 c からなり、凹部 ( 空間 ) 2 B を形成している。

図 2 ( b ) は、図 2 ( a ) の器体 1 の使用状態の一例を示す模式図である。

器体 1 には、図 4 に示すような蓋 1 0 が被せられ、焼成容器 1 0 0 を構成している。蓋 1 0 は、天板部 1 0 a と枠部 1 0 b を備える。

また、図 2 ( a ) において、更に器体 1 には図 4 に示すような溝 5 a を有する。溝 5 a は、溝側部 5 a 1、5 a 3、及び溝底部 5 a 1 からなる。溝側部 5 a 3 は、断面 L 字状の板材の底部 5 a 1 の端部を第 2 の側壁 5 に溶接により結合させることにより第 2 の側壁 5 の一部として形成されている。開口 6 は、天板部 1 0 a により覆われ、枠部 1 0 b が溝 5 a に嵌合される。

図 2 ( b ) は、上記焼成容器 1 0 0 を用いて、黒鉛材 1 1 を焼成装置に置いて焼成するときの焼成容器 1 0 0 への黒鉛材 1 1、詰め粉 1 2、充填材 1 3、及び被覆材 1 4 の配置の態様の断面を模式的に示したものである。同図に示すように黒鉛材 1 1 は、詰め粉 1 2 に埋設され、蓋 1 0 をして溝 5 a に充填材 1 3 を入れたときには、枠部 1 0 b と溝側部 5 a 2 により形成される溝開口部 5 a 4 の内、充填材 1 3 が露出している領域 5 a 4 1 は被覆材 1 4 により塞がれてもよい。被覆材 1 4 は、溝側部 5 a 2、天板部 1 0 a に施されていてもよい。

#### 【 0 0 3 0 】

また、図 3 の器体の態様では、凸部 2 A の第 1 の側壁 2 a、2 b の間に間隔を一定に保つ補強部材 2 f が入っている。この補強部材により、凸部 2 A、ひいては凹部 ( 空間 ) 2 B が変形しにくく、伝熱性能を維持できる。

また、器体 1 は、底壁 4 及び第 2 側壁 5 の表面に、格子状のリブ 7 を有する。吊具 8 は、焼成容器 1 0 0 の移動時に使用される。

更に、開口 6 に沿って溝 5 a が設けられている。図 3、4 に示すように溝 5 a は、図 2 ( b ) と同様に溝底部 5 a 1、溝側部 5 a 2、5 a 3 からなり、溝開口部 5 a 4 を有する。溝側部 5 a 3 は、断面 L 字状の板材の溝底部 5 a 1 の端部を第 2 の側壁 5 に溶接により結合させることにより形成されている。開口 6 は、蓋 1 0 によって覆われ、具体的には、天板部 1 0 a により覆われ、枠部 1 0 b が溝 5 a に嵌合される。

図 2 ( b ) に示すように溝 5 a に充填材を入れたときには、枠部 1 0 b と溝側部 5 a 2 により形成される溝開口部 5 a 4 の内、詰め粉が露出している領域は被覆材により塞がれてもよい。被覆材は、溝側部 5 a 2、蓋 1 0 に施されていてもよい。

#### 【 0 0 3 1 】

上記具体的態様では、収容部、凹部が直方体状の例を挙げたが、収容部、凹部を円筒状

10

20

30

40

50

等とし、黒鉛材をドーナツ状の柱体等としてもよい。また、収容部、凹部の形状は、上記に限定されないことは前記より明らかである。

【実施例】

【0032】

以下、本発明の実施例について説明するが、本発明はこれらに制限されないことは明らかである。

【0033】

[実施例1]

本発明の黒鉛材の製造方法を以下の順に従って説明する。

- (1) 原材料コークスの粉碎原料を得る一次粉碎工程
- (2) ピッチと原材料コークスの混練物を得る混練工程
- (3) 混練物を粉碎し、成形原料を得る二次粉碎工程
- (4) 成形原料を成形し成形体を得る成形工程
- (5) 成形体を加熱することにより、揮発分を除去し焼成体を得る焼成工程
- (6) 焼成体を焼成工程よりも高い温度で熱処理し、黒鉛化する黒鉛化工程

<一次粉碎工程>

1次粉碎工程において、黒鉛材の骨材を調整する。骨材としては、仮焼ピッチコークスを利用する。仮焼ピッチコークスをローラーミルにより平均粒子径が15 $\mu$ m程度になるよう粉碎し粉碎原料を得る。尚、骨材であるコークスの種類、平均粒子径は特に限定されず、どのようなものでも利用することができる。

<混練工程>

前記一次粉碎工程で得られた粉碎原料を、ピッチと混合し、250 $^{\circ}$ Cの熱を加えながらニーダーで混練し、混練物を得る。混合比は粉碎原料100重量部に対し、ピッチは60重量部である。尚、混練の温度、ピッチの投入量は特に限定されず、どのような条件でも利用することができる。

<二次粉碎工程>

前記混練工程で得られた混練物をピンミルで粉碎し、成形原料を得る。成形原料は平均粒子径が30 $\mu$ m程度である。尚、平均粒子径は特に限定されず、どのような平均粒子径でも利用することができる。

<成形工程>

前記二次粉碎工程で得られた成形原料をゴムバッグに詰め、冷間静水圧成形(CIP: Cold Isostatic Press)し成形体を得る。成形圧は100MPaである。成形体の大きさは、350 $\times$ 600 $\times$ 1000mmである。尚、成形方法、成形圧力は特に限定されず、押出成形、一軸成形などどのような装置、圧力でも利用することができる。

<焼成工程>

前記工程で得られた黒鉛材の成形体を焼成する。まず、器体を準備する。器体は図3に示すような形状であり、補強部を有している。器体の形状は、図3に示すように1100 $\times$ 900の開口を有し深さが900mmである。収容部は、高さ800mm幅50mmの凹部で2つに分割されている。個々の収容部の内寸は、1100 $\times$ 425 $\times$ 900hである。(900hは高さ方向である。)器体は開口の外周に沿って蓋を支持する溝を有している。溝の深さ、幅はそれぞれ50mmである。まず器体の底に詰め粉を敷く。詰め粉は3cm程度の厚さである。次に黒鉛材の成形体を器体内に入れる。600mmの方向が高さになるように入れる。さらに黒鉛材の成形体を覆うように詰め粉を被せ、成形体を詰め粉に沈ませる。詰め粉をさらに50mmの厚さで敷く。詰め粉はガス発生体として機能する。ここで詰め粉は粒状の仮焼コークス(生コークス)である。粒状の仮焼コークスの粒子径は、6mmの篩下のものを用いる。

次に、枠部を有する蓋を器体の溝に落とし込むように載せた後、溝の全周に渡って充填材を充填する。充填材は、詰め粉と同じ粒状の仮焼コークスである。さらに充填材を覆うように溝の全周に渡ってモルタルで覆う。モルタルは、被覆材として機能する。

10

20

30

40

50

こうして準備された焼成容器は図2(b)に示すような態様であり、焼成炉内に設置される。焼成炉はガス炉であり、天然ガスと空気との燃焼炎を炉内に導入し加熱する。燃焼炎が局所的に当たらないように炉内には循環ファンが備えられている。焼成炉を、3 / hの昇温速度でゆっくりと昇温させる。バーナーから発せられる加熱されたガスは、凹部を含む焼成容器(器体)の外側及び凸部を含む焼成容器(器体)の内側から収容部に伝熱され、黒鉛材の成形体は両側から加熱される。昇温に伴って焼成容器内の詰め粉等のガス発生体から、炭化水素ガス等が継続的に放出される。放出された炭化水素ガス等は、焼成容器内の内圧を高め、余剰のガスを器体の溝と蓋とのすき間から外部に放出し焼成容器内の酸素濃度を低下させる。器体の溝には、粒状の充填材(仮焼コークス)が充填されているので、余剰のガスが焼成容器内から外に向かって一方向の流れを形成し、逆方向のガスの流れは起こりにくくなる。さらに本実施例では、モルタルが被覆材として覆われている。モルタルは焼成により硬化するので、充填材が循環ファンの気流によりこぼれないように錘として機能する。また、モルタルは不燃性であるので充填材(仮焼コークス)が直接外気に曝されず充填材の酸化を遅くすることもできる。尚、充填材では酸化が起こっても、充填材が残ってさえいればガスの侵入を防止する機能を維持することはできる。

10

焼成が完了した後、器体の詰め粉の中から黒鉛材の焼成体を取り出す。

< 黒鉛化工程 >

前記焼成工程で得られた焼成体を黒鉛化する。黒鉛化は、アチェソン炉で行う。処理温度は2600 である。尚、特に黒鉛化方法、処理温度は限定されない。

20

【0034】

本発明の黒鉛材の製造方法は、焼成方法を提供するものであり、黒鉛材の成形体はどのようなものを用いてもよい。また本発明の黒鉛材の製造方法で得られた焼成体は、どのような方法で黒鉛化してもよく特に限定されない。

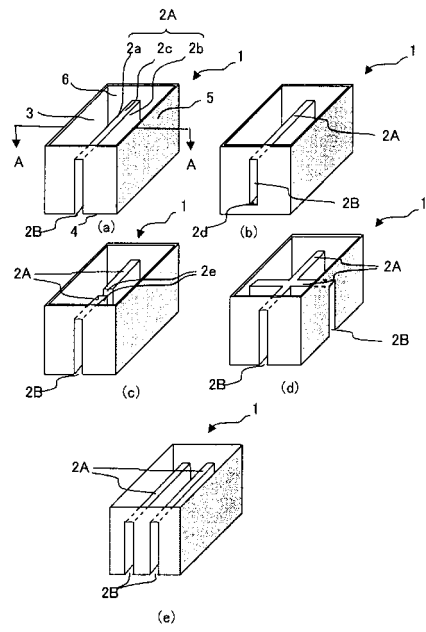
【符号の説明】

【0035】

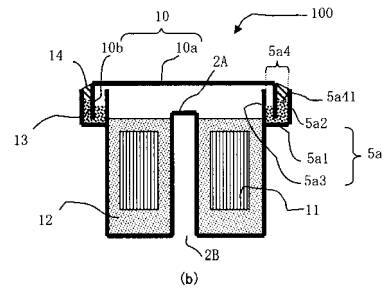
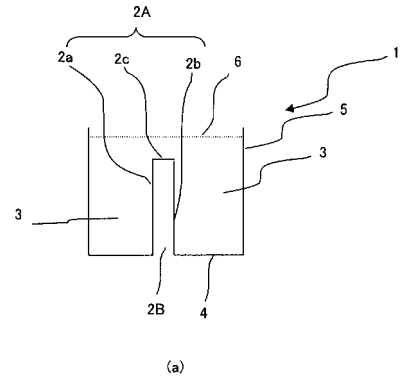
1 ... 器体、2 A ... 凸部、2 B ... 凹部(空間)、2 a , 2 b ... 第1の側壁、2 c , 2 d , 2 e ... 壁、2 f ... 補強部材、3 ... 収容部、4 ... 底壁、5 ... 第2の側壁、5 a ... 溝、5 a 1 ... 溝底部、5 a 2 ... 溝側部、5 a 3 ... 溝側部、5 a 4 ... 溝開口部、5 a 4 1 ... 充填材が露出している領域、5 b ... 吊具、6 ... 開口、7 ... リブ、10 ... 蓋、10 a ... 天板部、10 b ... 枠部、11 ... 黒鉛材、12 ... 詰め粉、13 ... 充填材、14 ... 被覆材、100 ... 焼成容器。

30

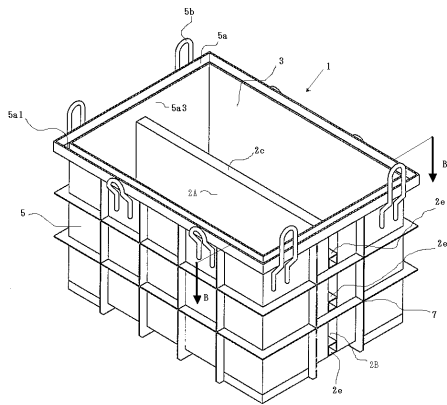
【 図 1 】



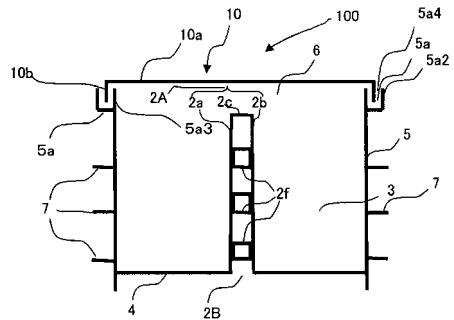
【 図 2 】



【 図 3 】



【 図 4 】



## フロントページの続き

- (72)発明者 小林 賢治  
岐阜県大垣市青柳町300 イビデン株式会社
- (72)発明者 西脇 利幸  
岐阜県大垣市青柳町300 イビデン株式会社