(19)日本国特許庁(JP)　(12)公表特許公報(A)　(11)公表番号
特表2024-541038
(P2024-541038A)
(43)公表日　令和6年11月6日(2024.11.6)

(51)国際特許分類		FI		テーマコード（参考）
C04B 35/532 (2006.01)		C04B	35/532	4G146
C01B 32/05 (2017.01)		C01B	32/05	
C01B 32/205 (2017.01)		C01B	32/205	
C01B 32/97 (2017.01)		C01B	32/97	
C01B 32/984 (2017.01)		C01B	32/984	

審査請求　有　予備審査請求　未請求　（全19頁）　最終頁に続く

(21)出願番号　特願2024-525584(P2024-525584)
(86)(22)出願日　令和4年10月13日(2022.10.13)
(85)翻訳文提出日　令和6年5月21日(2024.5.21)
(86)国際出願番号　PCT/EP2022/078542
(87)国際公開番号　WO2023/072613
(87)国際公開日　令和5年5月4日(2023.5.4)
(31)優先権主張番号　102021128414.7
(32)優先日　令和3年11月1日(2021.11.1)
(33)優先権主張国・地域又は機関
ドイツ(DE)
(81)指定国・地域　AP(BW,GH,GM,KE,LR,LS,MW,MZ,NA,RW,SD,SL,ST,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA(AM,AZ,BY,KG,KZ,RU,TJ,TM),EP(AL,AT,BE,BG,CH,CY,CZ,DE,DK,EE,ES,FI,FR,GB,GR,HR,HU,IE,IS,IT,LT,LU,LV,MC,
最終頁に続く

(71)出願人　522242292
ニッポン・コルンマイヤー・カーボン・グループ・ゲゼルシャフト・ミト・ベシュレンクテル・ハフツング
ドイツ連邦共和国、５３５７８ ヴィントハーゲン、イム・ナセン、３
(74)代理人　100069556
弁理士　江崎 光史
(74)代理人　100111486
弁理士　鍛冶澤 實
(74)代理人　100139527
弁理士　上西 克礼
(74)代理人　100164781
弁理士　虎山 一郎
(74)代理人　100221981
最終頁に続く

(54)【発明の名称】　炭化または黒鉛化された３Ｄ物体の製造方法

(57)【要約】
本発明は、炭化または黒鉛化された３Ｄ物体を製造する方法に関し、このような３Ｄ物体を特に簡単に実現するという課題に基づき、該方法を用いることにより、構造の乱れなく、比較的複雑な３Ｄ物体も製造することができる。前記課題は、炭化もしくは黒鉛化可能な材料を、流動性有機系接着剤または流動性熱可塑性有機物質と混合して、混練可能なほぼ形状安定性のコンパウンドとし、そしてこのコンパウンドを成形して３Ｄブランクとし、その後、高められた温度で、所定の時間にわたって乾燥及びガス放出プロセスを行い、その後、炉中、保護ガス雰囲気下に３Ｄブランクを炭化もしくは黒鉛化して３Ｄ物体を製造し、この際、炭化もしくは黒鉛化に必要な温度には、低い加熱速度で接近する、ことによって達成される。

【特許請求の範囲】
【請求項１】
炭化または黒鉛化３Ｄ物体を製造するための方法であって、カーボンブラック、黒鉛粉、天然黒鉛、セルロースもしくはトウモロコシデンプンまたはこれらの材料の一部もしくは全ての混合物でできた炭化または黒鉛化可能な材料を、流動性有機系接着剤または流動性熱可塑性有機物質と混合して、混練可能な形状安定性のコンパウンドを形成し、そしてこのコンパウンドを、テフロンまたはシリコーンでできた型を用いて成形して３Ｄブランクを形成し、そしてこの型から３Ｄブランクを取り出すこと、及び所定の時間にわたって室温でまたは最大１００℃で後続の乾燥及びガス放出プロセスを行い、その後、１４０℃から最大４５０℃までの温度で安定化及び均質化工程を行い、その後、炉中、保護ガス雰囲気下に３Ｄブランクの炭化または黒鉛化を行って３Ｄ物体を製造し、この際、炭化または黒鉛化のために必要な温度には１℃／分の加熱速度で接近し、その後、温度処理を行うことを特徴とする、前記方法。
【請求項２】
竹繊維、綿繊維、麻繊維、サイザル繊維または黒鉛繊維を、混練性を維持しながら炭化もしくは黒鉛化可能な前記材料に混ぜ入れることを特徴とする、請求項１に記載の方法。
【請求項３】
３Ｄブランクの成形を、手で及び／またはひな形を用いて行うことを特徴とする、請求項１または２に記載の方法。
【請求項４】
３Ｄブランクの安定化及び均質化が、炉の加熱中に行われる、請求項３に記載の方法。
【請求項５】
３Ｄ成形品を、様々な結晶構造を有する純粋な炭素が生じるまで、１，０００℃の一定の温度で真空または保護ガス下に炭化して３Ｄ物体を形成することを特徴とする、請求項１～４のいずれか一つに記載の方法。
【請求項６】
３Ｄ成形品を、２，０００℃以上の一定の温度で、真空または保護ガス下に炉中で黒鉛化して３Ｄ物体を形成することを特徴とする、請求項１～５のいずれか一つに記載の方法。
【請求項７】
３Ｄ成形品を、２，５００℃を超える温度で、真空または保護ガス下に炉中で完全に黒鉛化して３Ｄ物体を形成することを特徴とする、請求項６に記載の方法。
【請求項８】
保護ガスとしてアルゴンまたはヘリウムが使用されることを特徴とする、請求項１～７のいずれか一つに記載の方法。
【請求項９】
目的の温度が達成されるまで約１℃／分の加熱速度を用いた３Ｄ成形品の黒鉛化の後に、約３０分間から数時間にわたる温度処理を行うことを特徴とする、請求項７または８に記載の方法。
【請求項１０】
混練可能なコンパウンドに金属粉またはケイ素粉を混ぜ入れ、その結果、＞１，０００℃で、炉中、保護ガス下で３Ｄブランクを高温処理すると、炭化金属または炭化ケイ素でできた３Ｄ成形品が製造されることを特徴とする、請求項１～９のいずれか一つに記載の方法。
【請求項１１】
黒鉛化された発泡３Ｄ物体を、炉中、＞１，２００℃の温度下に、３０ｍｂａｒの圧力で、キャリアガスとしてアルゴンを用いて気体状のＳｉＯを供給しながら、ＳｉＣでできた３Ｄ物体に変換することを特徴とする、請求項１～１０のいずれか一つに記載の方法。
【発明の詳細な説明】
【技術分野】
【０００１】

本発明は、炭化もしくは黒鉛化された３Ｄ物体の製造法に関する。

【背景技術】

【０００２】

高温下での使用にも適しているこのような炭化もしくは黒鉛化３Ｄ物体は、様々な部材、例えば炉のライニング、建築部材、または任意の中空体、容器または坩堝であることができる。

【０００３】

３Ｄ物体は、カーボンブラックまたは黒鉛の簡単な成形及びその後の焼結によっては製造することができないため、一般的には、適切な炭素含有でかつ成形可能なコンパウンドを製造する必要がある。この目的のためには、カーボンブラック、コークスまたは黒鉛をグラニュールの形で、適切なバインダー、例えば熱可塑性バインダーと混合することが通常である。バインダーとしては、コールタールまたは石油ピッチをベースとするピッチ、または合成樹脂も考慮される。

【０００４】

次いで、これらの混合物を、プレスしてグリーン成形品に成形し、そして炉中、約３，０００℃で炭化または黒鉛化し、その際、バインダーが揮発成分に分解する。バインダーの残物として炭素及びバインダーコークスが多孔性構造物の形で残留する。

【０００５】

その代わりに、グリーン成形品を、抵抗要素として炉内に各電極間に配置し、そして電流によって加熱することもできる。

【０００６】

このような成形品の炭化または黒鉛化の際の困難さは、その場合に必要な高温下に揮発性物質が程度の差はあれ激しくガスを放出し、これが、亀裂やガスの内包など構造の乱れを招き得ることである。

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【０００７】

本発明は、実現が格別観点であり、かつ比較的複雑な３Ｄ物体でも構造の乱れなく製造することを可能にする、炭化もしくは黒鉛化された３Ｄ物体の製造方法を提供するという課題に基づく。

【課題を解決するための手段】

【０００８】

前記課題は、炭化もしくは黒鉛化可能な材料と、流動性有機系接着剤または流動性熱可塑性有機物質とから構成される、混練可能でほぼ形状安定性のコンパウンドを製造し、このコンパウンドを成形して３Ｄブランクとし、その後、高められた温度下に乾燥プロセス及びガス放出プロセスを行い、その後、この３Ｄブランクを、炉中で真空または保護ガス下に炭化もしくは黒鉛化して３Ｄ物体を製造し、この際、炭化もしくは黒鉛化のために必要な温度には、低い加熱速度で接近することによって達成される。

【０００９】

炭化もしくは黒鉛化可能な材料としては、好ましくは、カーボンブラック、黒鉛粉、天然黒鉛、セルロースもしくはトウモロコシデンプン、またはこれらの材料の一部のもしくは全部の混合物などが考慮される。

【００１０】

製造される３Ｄ物体の強度または多孔性に影響を及ぼすためには、竹繊維、綿繊維、麻繊維、サイザル繊維または黒鉛繊維を、混練性を維持しながら炭化もしくは黒鉛化可能な材料に混ぜ入れることができる。

【００１１】

第一の実施形態では、３Ｄブランクの成形は、適当なひな形を用いて手で行われる。

【００１２】

特別な態様の一つでは、３Ｄブランクは、型中で成形することによって行われる。

【００１３】
保護ガスとしては、好ましくはアルゴンまたはヘリウムが使用される。
【００１４】
代替的に、３Ｄブランクを、乾燥プロセスの後に、空気中１７０℃のまたは空気中最大４５０℃までの安定化温度で安定化及び均質化工程に付して、３Ｄ成形品を生じさせることができ、この際、２５０℃の温度が好ましい。
【００１５】
安定化及び均質化工程は、原則的に、アルゴンなどの保護ガス下に行うこともできる。
【００１６】
３Ｄブランクの安定化及び均質化は、炉の加熱中にも起こり得る。
【００１７】
本発明では引き続き、３Ｄ成形品を、約１，０００℃の一定温度で、様々な結晶構造の純炭素が生じるまで炭化して３Ｄ物体とする。
【００１８】
本発明の他の続け方では、３Ｄ成形品を、２，０００℃以上の一定温度で黒鉛化する。
【００１９】
最後に、３Ｄ成形品は、２，５００℃超の温度で完全に黒鉛化させることができる。
【００２０】
好ましくは、黒鉛化は、目的の温度に達するまで約１℃／分の加熱速度で行い、その後、３Ｄ成形品のサイズに依存して約３０分にわたって、熱処理する。
【００２１】
本発明の好ましい態様の一つでは、混練可能なコンパウンドには金属粉もしくはケイ素粉を混ぜ入れて、保護ガス下での＞１，０００℃の３Ｄ成形品の高温処理において、炭化金属または炭化ケイ素が形成されるようにすることができる。
【００２２】
黒鉛化された発泡３Ｄ物体は、炉中、＞１，２００℃の温度下に、約３０ｍｂａｒの圧力で、キャリアガスとしてアルゴンを用いてガス状ＳｉＯを供給しつつ、ＳｉＣでできた３Ｄ物体に変換することもできる。
【００２３】
以下、本発明を実施例に基づいてより詳しく説明する。
【実施例】
【００２４】
第一のプロセスステップでは、炭化もしくは黒鉛化可能な材料を流動性有機系接着剤または流動性熱可塑性有機物質と混合することによって、混練可能でほぼ形状安定性のコンパウンドを製造し、その後、このコンパウンドを成形して３Ｄブランクを形成する。次いで、前記３Ｄブランクから、乾燥またはガス放出プロセスにおいて、高められた温度下に、特に水分及びガス内包物を除去し、それによって３Ｄ成形品に変換する。それにより、３Ｄ物体を製造するための、炉中、真空または保護ガス、例えばアルゴンまたはヘリウム下でのその後の３Ｄ成形品の炭化または黒鉛化の際の亀裂の発生を回避することができる。
【００２５】
炭化または黒鉛化可能な有機材料としては、好ましくは、カーボンブラック、黒鉛粉、天然黒鉛、並びにデンプン、例えばトウモロコシまたは馬鈴薯デンプンまたは類似物、またはこれらの材料の一部または全ての混合物を使用することができる。
【００２６】
完成した炭化もしくは黒鉛化３Ｄ物体の強度または多孔性に影響を及ぼすためには、竹繊維、綿繊維、麻繊維、サイザル繊維もしくは他の適当な植物繊維、または黒鉛繊維を、必要に応じて更に別の流動性接着剤または流動性有機物質を所望の稠度が達成されるまで加えることによって、混練性を維持しながら炭化されたまたは黒鉛化可能な有機材料に混ぜ入れることができる。

【００２７】
３Ｄブランクの成形は、例えばひな形を用いて手で、または型中で成形することによって行うことができ、この際、３Ｄブランクは、乾燥プロセスの前に、型から取り出すのがよい。３Ｄブランクの比較的簡単な離型を可能にするためには、テフロン、シリコーンまたは限定された弾性を有する他の材料でできた型を使用することができる。
【００２８】
代替的に、３Ｄ成形品は、存在する水を除去するための室温でまたは最大１００℃での乾燥プロセスの後に付すことができる。空気中１４０℃のまたは保護ガスもしくは真空下で最大４５０℃までの安定化温度での後段の安定化及び均質化工程（この際、２５０℃の温度が好ましい）では、ガス放出を起こして、後での炭化または黒鉛化の際の亀裂の発生を回避する。
【００２９】
３Ｄ成形品は、安定化または均質化工程の間は適切な形状のままであり得ることが理解される。
【００３０】
３Ｄ成形品の安定化及び均質化は、炉を加熱する間にも起き得る。
【００３１】
３Ｄ成形品の安定化は、炭化／黒鉛化の時のそれの分解を予防するために必要である、というのも、そうしないと、３Ｄ成形品は融解するかまたは大きく変形してしまう虞があるからである。安定化の間、原子／分子は再組織化して、その結果、これらは高温プロセスに耐えるようになる。
【００３２】
更に引き続き、３Ｄ成形品は、様々な結晶構造を有する純粋な炭素が生じるまで、約１，０００℃の一定の温度で炉中で３Ｄ物体に炭化される。
【００３３】
本発明の他の続け方では、次いで、３Ｄ成形品は、３Ｄ物体を形成するために２，０００℃以上の一定の温度で炉中で黒鉛化される。
【００３４】
最後に、３Ｄ成形品は、３Ｄ物品の成形のために２，５００℃を超える温度で炉中で完全に黒鉛化することができる。
【００３５】
炭化または黒鉛化は、３Ｄブランクの有機成分の燃焼を避けるために、保護ガス下に炉中で行う必要があることが理解される。
【００３６】
炭化または黒鉛化を真空下に行うことは確かに原則的に可能であるが、この場合には、３Ｄ成形品内部と真空との間の圧力差によって揮発成分が加速され、亀裂が発生し得るリスクがある。
【００３７】
この理由から、炉内に高圧をかけて、揮発性成分がゆっくりと拡散放出されるようにすることが有利であり、その結果、亀裂及び破損を確実に避けることができる。
【００３８】
好ましくは、炭化または黒鉛化は、目的の温度が達成されるまで約１℃／分の加熱速度で行われ、その後、約３０分にわたって温度処理を行い、この際、数時間にわたる温度処理も可能である。
【００３９】
均一な炭化または黒鉛化を達成するためには、３Ｄ成形品を予め離型することが重要である。
【００４０】
本発明の特別な態様の一つでは、混練可能なコンパウンドには金属粉もしくはケイ素粉を混ぜ入れて、保護ガス下での＞１，０００℃の３Ｄ成形品の高温処理において、炭化金

属または炭化ケイ素が形成されるようにすることができる。

【００４１】

黒鉛化された発泡３Ｄ物体は、炉中、＞１，２００℃の温度下に、約３０ｍｂａｒの圧力で、キャリアガスとしてアルゴンを用いてガス状ＳｉＯを供給しつつ、ＳｉＣからなる３Ｄ物体に変換することもできる。

【手続補正書】
【提出日】令和6年7月2日(2024.7.2)
【手続補正１】
【補正対象書類名】明細書
【補正対象項目名】全文
【補正方法】変更
【補正の内容】
【発明の詳細な説明】
【技術分野】
【０００１】
本発明は、炭化もしくは黒鉛化された３Ｄ物体の製造法に関する。
【背景技術】
【０００２】
高温下での使用にも適しているこのような炭化もしくは黒鉛化３Ｄ物体は、様々な部材、例えば炉のライニング、建築部材、または任意の中空体、容器または坩堝であることができる。
【０００３】
３Ｄ物体は、カーボンブラックまたは黒鉛の簡単な成形及びその後の焼結によっては製造することができないため、一般的には、適切な炭素含有でかつ成形可能なコンパウンドを製造する必要がある。この目的のためには、カーボンブラック、コークスまたは黒鉛をグラニュールの形で、適切なバインダー、例えば熱可塑性バインダーと混合することが通常である。バインダーとしては、コールタールまたは石油ピッチをベースとするピッチ、または合成樹脂も考慮される。
【０００４】
次いで、これらの混合物を、プレスしてグリーン成形品に成形し、そして炉中、約３，０００℃で炭化または黒鉛化し、その際、バインダーが揮発成分に分解する。バインダーの残物として炭素及びバインダーコークスが多孔性構造物の形で残留する。
【０００５】
その代わりに、グリーン成形品を、抵抗要素として炉内に各電極間に配置し、そして電流によって加熱することもできる。
【０００６】
このような成形品の炭化または黒鉛化の際の困難さは、その場合に必要な高温下に揮発性物質が程度の差はあれ激しくガスを放出し、これが、亀裂やガスの内包など構造の乱れを招き得ることである。
【発明の概要】
【発明が解決しようとする課題】
【０００７】
本発明は、実現が格別観点であり、かつ比較的複雑な３Ｄ物体でも構造の乱れなく製造することを可能にする、炭化もしくは黒鉛化された３Ｄ物体の製造方法を提供するという課題に基づく。
【課題を解決するための手段】
【０００８】
前記課題は、炭化もしくは黒鉛化可能な材料と、流動性有機系接着剤または流動性熱可塑性有機物質とから構成される、混練可能でほぼ形状安定性のコンパウンドを製造し、このコンパウンドを、適切なひな形を用いて手で成形して３Ｄブランクとするか、あるいはテフロンまたはシリコーンでできた型中で成形しそしてこの型から３Ｄブランクを取り出すことによって３Ｄブランクとし、その後、室温でまたは最大１００℃で前記３Ｄブランクの乾燥プロセス及びガス放出プロセスを行って３Ｄ成形品に変換し、その後、空気中で１４０℃から最大４５０℃までの温度でこの３Ｄ成形品の安定化及び均質化工程を行い、その後、この３Ｄ成形品を、炉中で保護ガス雰囲気下に炭化もしくは黒鉛化して３Ｄ物体

を製造し、この際、炭化もしくは黒鉛化のために必要な温度には、低い加熱速度で接近することによって達成される。

【０００９】

炭化もしくは黒鉛化可能な材料としては、好ましくは、カーボンブラック、黒鉛粉、天然黒鉛、セルロースもしくはトウモロコシデンプン、またはこれらの材料の一部のもしくは全部の混合物などが考慮される。

【００１０】

製造される３Ｄ物体の強度または多孔性に影響を及ぼすためには、竹繊維、綿繊維、麻繊維、サイザル繊維または黒鉛繊維を、混練性を維持しながら炭化もしくは黒鉛化可能な材料に混ぜ入れることができる。

【００１１】

保護ガスとしては、好ましくはアルゴンまたはヘリウムが使用される。

【００１２】

代替的に、３Ｄブランクを、乾燥プロセスの後に、空気中１７０℃のまたは空気中最大４５０℃までの安定化温度で安定化及び均質化工程に付して、３Ｄ成形品を生じさせることができ、この際、２５０℃の温度が好ましい。

【００１３】

安定化及び均質化工程は、原則的に、アルゴンなどの保護ガス下に行うこともできる。

【００１４】

３Ｄブランクの安定化及び均質化は、炉の加熱中にも起こり得る。

【００１５】

本発明では引き続き、３Ｄ成形品を、約１，０００℃の一定温度で、様々な結晶構造の純炭素が生じるまで炭化して３Ｄ物体とする。

【００１６】

本発明の他の続け方では、３Ｄ成形品を、２，０００℃以上の一定温度で黒鉛化する。

【００１７】

最後に、３Ｄ成形品は、２，５００℃超の温度で完全に黒鉛化させることができる。

【００１８】

好ましくは、黒鉛化は、目的の温度に達するまで約１℃／分の加熱速度で行い、その後、３Ｄ成形品のサイズに依存して約３０分にわたって、熱処理する。

【００１９】

本発明の好ましい態様の一つでは、混練可能なコンパウンドには金属粉もしくはケイ素粉を混ぜ入れて、保護ガス下での＞１，０００℃の３Ｄ成形品の高温処理において、炭化金属または炭化ケイ素が形成されるようにすることができる。

【００２０】

黒鉛化された発泡３Ｄ物体は、炉中、＞１，２００℃の温度下に、約３０ｍｂａｒの圧力で、キャリアガスとしてアルゴンを用いてガス状ＳｉＯを供給しつつ、ＳｉＣでできた３Ｄ物体に変換することもできる。

【００２１】

以下、本発明を実施例に基づいてより詳しく説明する。

【実施例】

【００２２】

第一のプロセスステップでは、炭化もしくは黒鉛化可能な材料を流動性有機系接着剤または流動性熱可塑性有機物質と混合することによって、混練可能でほぼ形状安定性のコンパウンドを製造し、その後、このコンパウンドを成形して３Ｄブランクを形成する。次いで、前記３Ｄブランクから、乾燥またはガス放出プロセスにおいて、高められた温度下に、特に水分及びガス内包物を除去し、それによって３Ｄ成形品に変換する。それにより、３Ｄ物体を製造するための、炉中、真空または保護ガス、例えばアルゴンまたはヘリウム下でのその後の３Ｄ成形品の炭化または黒鉛化の際の亀裂の発生を回避することができる。

【００２３】
炭化または黒鉛化可能な有機材料としては、好ましくは、カーボンブラック、黒鉛粉、天然黒鉛、並びにデンプン、例えばトウモロコシまたは馬鈴薯デンプンまたは類似物、またはこれらの材料の一部または全ての混合物を使用することができる。
【００２４】
完成した炭化もしくは黒鉛化３Ｄ物体の強度または多孔性に影響を及ぼすためには、竹繊維、綿繊維、麻繊維、サイザル繊維もしくは他の適当な植物繊維、または黒鉛繊維を、必要に応じて更に別の流動性接着剤または流動性有機物質を所望の稠度が達成されるまで加えることによって、混練性を維持しながら炭化可能なまたは黒鉛化可能な有機材料に混ぜ入れることができる。
【００２５】
３Ｄブランクの成形は、例えばひな形を用いて手で、または型中で成形することによって行うことができ、この際、３Ｄブランクは、乾燥プロセスの前に、型から取り出すのがよい。３Ｄブランクの比較的簡単な離型を可能にするためには、テフロン、シリコーンまたは限定された弾性を有する他の材料でできた型を使用することができる。
【００２６】
代替的に、３Ｄ成形品は、存在する水を除去するために、室温でまたは最大１００℃での乾燥プロセスに付すことができる。空気中１４０℃のまたは保護ガスもしくは真空下で最大４５０℃までの安定化温度での後段の安定化及び均質化工程（この際、２５０℃の温度が好ましい）では、ガス放出を起こして、後での炭化または黒鉛化の際の亀裂の発生を回避する。
【００２７】
３Ｄ成形品は、安定化または均質化工程の間は適切な形状のままであり得ることが理解される。
【００２８】
３Ｄ成形品の安定化及び均質化は、炉を加熱する間にも起き得る。
【００２９】
３Ｄ成形品の安定化は、炭化／黒鉛化の時のそれの分解を予防するために必要である、というのも、そうしないと、３Ｄ成形品は融解するかまたは大きく変形してしまう虞があるからである。安定化の間、原子／分子は再組織化して、その結果、これらは高温プロセスに耐えるようになる。
【００３０】
更に引き続き、３Ｄ成形品は、様々な結晶構造を有する純粋な炭素が生じるまで、約１，０００℃の一定の温度で炉中で３Ｄ物体に炭化される。
【００３１】
本発明の他の続け方では、次いで、３Ｄ成形品は、３Ｄ物体を形成するために２，０００℃以上の一定の温度で炉中で黒鉛化される。
【００３２】
最後に、３Ｄ成形品は、３Ｄ物品の成形のために２，５００℃を超える温度で炉中で完全に黒鉛化することができる。
【００３３】
炭化または黒鉛化は、３Ｄブランクの有機成分の燃焼を避けるために、保護ガス下に炉中で行う必要があることが理解される。
【００３４】
炭化または黒鉛化を真空下に行うことは確かに原則的に可能であるが、この場合には、３Ｄ成形品内部と真空との間の圧力差によって揮発成分が加速され、亀裂が発生し得るリスクがある。
【００３５】
この理由から、炉内に高圧をかけて、揮発性成分がゆっくりと拡散放出されるようにすることが有利であり、その結果、亀裂及び破損を確実に避けることができる。

【００３６】
好ましくは、炭化または黒鉛化は、目的の温度が達成されるまで約１℃／分の加熱速度で行われ、その後、約３０分にわたって温度処理を行い、この際、数時間にわたる温度処理も可能である。
【００３７】
均一な炭化または黒鉛化を達成するためには、３Ｄ成形品を予め離型することが重要である。
【００３８】
本発明の特別な態様の一つでは、混練可能なコンパウンドには金属粉もしくはケイ素粉を混ぜ入れて、保護ガス下での＞１，０００℃の３Ｄ成形品の高温処理において、炭化金属または炭化ケイ素が形成されるようにすることができる。
【００３９】
黒鉛化された発泡３Ｄ物体は、炉中、＞１，２００℃の温度下に、約３０ｍｂａｒの圧力で、キャリアガスとしてアルゴンを用いてガス状ＳｉＯを供給しつつ、ＳｉＣからなる３Ｄ物体に変換することもできる。
【００４０】
本願は特許請求の範囲に記載の発明に係るものであるが、本願の開示は以下も包含する：
１．　炭化または黒鉛化３Ｄ物体を製造するための方法であって、カーボンブラック、黒鉛粉、天然黒鉛、セルロースもしくはトウモロコシデンプンまたはこれらの材料の一部もしくは全ての混合物でできた炭化または黒鉛化可能な材料を、流動性有機系接着剤または流動性熱可塑性有機物質と混合して、混練可能な形状安定性のコンパウンドを形成し、そしてこのコンパウンドを、テフロンまたはシリコーンでできた型を用いて成形して３Ｄブランクを形成し、そしてこの型から３Ｄブランクを取り出すこと、及び所定の時間にわたって室温でまたは最大１００℃で後続の乾燥及びガス放出プロセスを行い、その後、１４０℃から最大４５０℃までの温度で安定化及び均質化工程を行い、その後、炉中、保護ガス雰囲気下に３Ｄブランクの炭化または黒鉛化を行って３Ｄ物体を製造し、この際、炭化または黒鉛化のために必要な温度には１℃／分の加熱速度で接近し、その後、温度処理を行うことを特徴とする、前記方法。
２．　竹繊維、綿繊維、麻繊維、サイザル繊維または黒鉛繊維を、混練性を維持しながら炭化もしくは黒鉛化可能な前記材料に混ぜ入れることを特徴とする、前記１．に記載の方法。
３．　３Ｄブランクの成形を、手で及び／またはひな形を用いて行うことを特徴とする、前記１．または２．に記載の方法。
４．　３Ｄブランクの安定化及び均質化が、炉の加熱中に行われる、前記３．に記載の方法。
５．　３Ｄ成形品を、様々な結晶構造を有する純粋な炭素が生じるまで、１，０００℃の一定の温度で真空または保護ガス下に炭化して３Ｄ物体を形成することを特徴とする、前記１．～４．のいずれか一つに記載の方法。
６．　３Ｄ成形品を、２，０００℃以上の一定の温度で、真空または保護ガス下に炉中で黒鉛化して３Ｄ物体を形成することを特徴とする、前記１．～５．のいずれか一つに記載の方法。
７．　３Ｄ成形品を、２，５００℃を超える温度で、真空または保護ガス下に炉中で完全に黒鉛化して３Ｄ物体を形成することを特徴とする、前記６．に記載の方法。
８．　保護ガスとしてアルゴンまたはヘリウムが使用されることを特徴とする、前記１．～７．のいずれか一つに記載の方法。
９．　目的の温度が達成されるまで約１℃／分の加熱速度を用いた３Ｄ成形品の黒鉛化の後に、約３０分間から数時間にわたる温度処理を行うことを特徴とする、前記７．または８．に記載の方法。
１０．　混練可能なコンパウンドに金属粉またはケイ素粉を混ぜ入れ、その結果、＞１，０００℃で、炉中、保護ガス下で３Ｄブランクを高温処理すると、炭化金属または炭化ケ

イ素でできた３Ｄ成形品が製造されることを特徴とする、前記１．～９．のいずれか一つに記載の方法。
１１．　黒鉛化された発泡３Ｄ物体を、炉中、＞１，２００℃の温度下に、３０ｍｂａｒの圧力で、キャリアガスとしてアルゴンを用いて気体状のＳｉＯを供給しながら、ＳｉＣでできた３Ｄ物体に変換することを特徴とする、前記１．～１０．のいずれか一つに記載の方法。
【手続補正２】
【補正対象書類名】特許請求の範囲
【補正対象項目名】全文
【補正方法】変更
【補正の内容】
【特許請求の範囲】
【請求項１】
炭化または黒鉛化３Ｄ物体を製造するための方法であって、カーボンブラック、黒鉛粉、天然黒鉛、セルロースもしくはトウモロコシデンプンまたはこれらの材料の一部もしくは全ての混合物でできた炭化または黒鉛化可能な材料を、流動性有機系接着剤または流動性熱可塑性有機物質と混合して、混練可能な形状安定性のコンパウンドを形成し、そしてこのコンパウンドを、適切なひな形を用いて手で成形して３Ｄブランクとするか、あるいはテフロンまたはシリコーンでできた型中で成形しそしてこの型から３Ｄブランクを取り出すことによって３Ｄブランクとし、その後、室温でまたは最大１００℃で前記３Ｄブランクの乾燥及びガス放出プロセスを行って３Ｄ成形品に変換し、その後、空気中で１４０℃から最大４５０℃までの温度で前記３Ｄ成形品の安定化及び均質化工程を行い、その後、炉中、保護ガス雰囲気下に前記３Ｄ成形品の炭化または黒鉛化を行って３Ｄ物体を製造し、この際、炭化または黒鉛化のために必要な温度には１℃／分の加熱速度で接近し、その後、温度処理を行うことを特徴とする、前記方法。
【請求項２】
竹繊維、綿繊維、麻繊維、サイザル繊維または黒鉛繊維を、混練性を維持しながら炭化もしくは黒鉛化可能な前記材料に混ぜ入れることを特徴とする、請求項１に記載の方法。
【請求項３】
３Ｄブランクの安定化及び均質化が、炉の加熱中に行われる、請求項１に記載の方法。
【請求項４】
３Ｄ成形品を、様々な結晶構造を有する純粋な炭素が生じるまで、１，０００℃の一定の温度で真空または保護ガス下に炭化して３Ｄ物体を形成することを特徴とする、請求項１に記載の方法。
【請求項５】
３Ｄ成形品を、２，０００℃以上の一定の温度で、真空または保護ガス下に炉中で黒鉛化して３Ｄ物体を形成することを特徴とする、請求項１に記載の方法。
【請求項６】
３Ｄ成形品を、２，５００℃を超える温度で、真空または保護ガス下に炉中で完全に黒鉛化して３Ｄ物体を形成することを特徴とする、請求項５に記載の方法。
【請求項７】
保護ガスとしてアルゴンまたはヘリウムが使用されることを特徴とする、請求項１に記載の方法。
【請求項８】
約１℃／分の加熱速度を用いた３Ｄ成形品の黒鉛化を目的の温度が達成されるまで行い、その後、約３０分間から数時間にわたる温度処理を行うことを特徴とする、請求項６に記載の方法。
【請求項９】
混練可能なコンパウンドに金属粉またはケイ素粉を混ぜ入れ、その結果、＞１，０００℃で、炉中、保護ガス下で３Ｄブランクを高温処理すると、炭化金属または炭化ケイ素で

できた３Ｄ成形品が製造されることを特徴とする、請求項１～８のいずれか一つに記載の方法。

【請求項１０】

黒鉛化された発泡３Ｄ物体を、炉中、＞１，２００℃の温度下に、３０ｍｂａｒの圧力で、キャリアガスとしてアルゴンを用いて気体状のＳｉＯを供給しながら、ＳｉＣでできた３Ｄ物体に変換することを特徴とする、請求項１～８のいずれか一つに記載の方法。

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/EP2022/078542

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C04B 35/52(2006.01)i; ***B28B 1/00***(2006.01)i; ***C04B 35/532***(2006.01)i; ***C04B 35/56***(2006.01)i; ***C04B 35/573***(2006.01)i; ***C04B 35/65***(2006.01)i; ***C04B 35/83***(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C04B; B29C; B28B

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

EPO-Internal

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	GB 1415089 A (VALLEY CO INC) 26 November 1975 (1975-11-26) page 17, line 101 - page 23, line 80; claims 1,20; table II	1,3,4,6,8,9
Y	EP 3789367 A1 (UNIV SOUTHWEST JIAOTONG [CN]) 10 March 2021 (2021-03-10) example IV	1-5
Y	JP 2016179923 A (KOBE STEEL LTD) 13 October 2016 (2016-10-13) paragraph [0113]	1,3,4,6
Y	WO 2015040064 A1 (UNIV LORRAINE [FR]; CENTRE NAT RECH SCIENT [FR]) 26 March 2015 (2015-03-26) page 9, line 23 - page 10, line 2; claim 1	1-7,10,11
Y	CN 111138207 A (DATONG XINCHENG NEW MATERIAL CO LTD) 12 May 2020 (2020-05-12) claim 1	7
Y	CN 108675790 A (UNIV CHINA THREE GORGES CTGU ET AL.) 19 October 2018 (2018-10-19) examples 1,2	10

☑ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☑ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
12 January 2023	**23 January 2023**
Name and mailing address of the ISA/EP **European Patent Office** **p.b. 5818, Patentlaan 2, 2280 HV Rijswijk** **Netherlands** Telephone No. **(+31-70)340-2040** Facsimile No. **(+31-70)340-3016**	Authorized officer **Raming, Tomas** Telephone No.

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (January 2015)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/EP2022/078542

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2007145665 A (TOKAI KONETSU KOGYO KK) 14 June 2007 (2007-06-14) example 1	11

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (January 2015)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/EP2022/078542

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)			Publication date (day/month/year)
GB	1415089	A	26 November 1975	DE	2326937	A1	20 December 1973
				DK	149606	B	11 August 1986
				FR	2186428	A1	11 January 1974
				GB	1415089	A	26 November 1975
				IT	985263	B	30 November 1974
				JP	S4955587	A	29 May 1974
				JP	S5823325	B2	14 May 1983
				NL	7307568	A	04 December 1973
				SE	395881	B	29 August 1977
EP	3789367	A1	10 March 2021	CN	110436926	A	12 November 2019
				EP	3789367	A1	10 March 2021
				JP	7053059	B2	12 April 2022
				JP	2021031381	A	01 March 2021
JP	2016179923	A	13 October 2016	NONE			
WO	2015040064	A1	26 March 2015	FR	3010994	A1	27 March 2015
				WO	2015040064	A1	26 March 2015
CN	111138207	A	12 May 2020	NONE			
CN	108675790	A	19 October 2018	NONE			
JP	2007145665	A	14 June 2007	NONE			

Form PCT/ISA/210 (patent family annex) (January 2015)

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2022/078542

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
INV. C04B35/52 B28B1/00 C04B35/532 C04B35/56 C04B35/573
C04B35/65 C04B35/83
ADD.
Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPC) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPC

B. RECHERCHIERTE GEBIETE
Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
C04B B29C B28B

Recherchierte, aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)
EPO-Internal

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	GB 1 415 089 A (VALLEY CO INC) 26. November 1975 (1975-11-26) Seite 17, Zeile 101 - Seite 23, Zeile 80; Ansprüche 1,20; Tabelle II	1,3,4,6, 8,9
Y	EP 3 789 367 A1 (UNIV SOUTHWEST JIAOTONG [CN]) 10. März 2021 (2021-03-10) Beispiel IV	1-5
Y	JP 2016 179923 A (KOBE STEEL LTD) 13. Oktober 2016 (2016-10-13) Absatz [0113]	1,3,4,6
Y	WO 2015/040064 A1 (UNIV LORRAINE [FR]; CENTRE NAT RECH SCIENT [FR]) 26. März 2015 (2015-03-26) Seite 9, Zeile 23 - Seite 10, Zeile 2; Anspruch 1	1-7,10, 11

-/--

[X] Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen [X] Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :
"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist
"E" frühere Anmeldung oder Patent, die bzw. das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist
"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)
"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht
"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist
"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist
"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung;; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden
"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung;; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist
"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche	Absendedatum des internationalen Recherchenberichts
12. Januar 2023	23/01/2023

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde	Bevollmächtigter Bediensteter
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016	Raming, Tomas

Formblatt PCT/ISA/210 (Blatt 2) (April 2005)

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2022/078542

C. (Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	CN 111 138 207 A (DATONG XINCHENG NEW MATERIAL CO LTD) 12. Mai 2020 (2020-05-12) Anspruch 1	7
Y	CN 108 675 790 A (UNIV CHINA THREE GORGES CTGU ET AL.) 19. Oktober 2018 (2018-10-19) Beispiele 1,2	10
Y	JP 2007 145665 A (TOKAI KONETSU KOGYO KK) 14. Juni 2007 (2007-06-14) Beispiel 1	11

Formblatt PCT/ISA/210 (Fortsetzung von Blatt 2) (April 2005)

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2022/078542

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
GB 1415089 A	26-11-1975	DE 2326937 A1	20-12-1973
		DK 149606 B	11-08-1986
		FR 2186428 A1	11-01-1974
		GB 1415089 A	26-11-1975
		IT 985263 B	30-11-1974
		JP S4955587 A	29-05-1974
		JP S5823325 B2	14-05-1983
		NL 7307568 A	04-12-1973
		SE 395881 B	29-08-1977
EP 3789367 A1	10-03-2021	CN 110436926 A	12-11-2019
		EP 3789367 A1	10-03-2021
		JP 7053059 B2	12-04-2022
		JP 2021031381 A	01-03-2021
JP 2016179923 A	13-10-2016	KEINE	
WO 2015040064 A1	26-03-2015	FR 3010994 A1	27-03-2015
		WO 2015040064 A1	26-03-2015
CN 111138207 A	12-05-2020	KEINE	
CN 108675790 A	19-10-2018	KEINE	
JP 2007145665 A	14-06-2007	KEINE	

Formblatt PCT/ISA/210 (Anhang Patentfamilie) (April 2005)

フロントページの続き

(51)国際特許分類		FI		テーマコード（参考）
Ｃ０４Ｂ	*35/83 (2006.01)*	Ｃ０４Ｂ	35/83	
Ｃ０４Ｂ	*35/573 (2006.01)*	Ｃ０４Ｂ	35/573	

MK,MT,NL,NO,PL,PT,RO,RS,SE,SI,SK,SM,TR),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,GQ,GW,KM,ML,MR,NE,SN,TD,TG),AE,AG,AL,AM,AO,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BH,BN,BR,BW,BY,BZ,CA,CH,CL,CN,CO,CR,CU,CV,CZ,DE,DJ,DK,DM,DO,DZ,EC,EE,EG,ES,FI,GB,GD,GE,GH,GM,GT,HN,HR,HU,ID,IL,IN,IQ,IR,IS,IT,JM,JO,JP,KE,KG,KH,KN,KP,KR,KW,KZ,LA,LC,LK,LR,LS,LU,LY,MA,MD,ME,MG,MK,MN,MW,MX,MY,MZ,NA,NG,NI,NO,NZ,OM,PA,PE,PG,PH,PL,PT,QA,RO,RS,RU,RW,SA,SC,SD,SE,SG,SK,SL,ST,SV,SY,TH,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG,US,UZ,VC,VN,WS,ZA,ZM,ZW

（特許庁注：以下のものは登録商標）

１．テフロン

弁理士　石田 大成

(72)発明者　コルンマイヤー・トルステン

ドイツ連邦共和国、５３６３９ ケーニヒスヴィンター、ハルトヴェーク、３６

(72)発明者　クライン・ダーフィト

ドイツ連邦共和国、５３７７３ ヘンネフ・（ジーク）、ツーア・ローレンツヘーエ、２６

Ｆターム（参考）　4G146　AA01 AA02 AB05 BA02 BA03 BA31 BA32 BB02 BB04 BB06 BC23 BC27 BC35B BC36A BC37A MA14 MB05 MB14 NA01 NB07 NB14 NB18 QA04