

發明專利說明書

FP13907D

(本說明書格式、順序及粗體字，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※申請案號：94100836

※申請日期：94.1.12

※IPC 分類：H05B 7/12

一、發明名稱：(中文/英文)

石墨電極用端面封止

END-FACE SEAL FOR GRAPHITE ELECTRODES

二、申請人：(共 1 人)

姓名或名稱：(中文/英文)

烏卡碳素股份有限公司

UCAR CARBON COMPANY INC.

代表人：(中文/英文)

凱倫 G. 納渥德/NARWOLD, KAREN G.

住居所或營業所地址：(中文/英文)

美國俄亥俄州 44130 巴馬史諾路 12900 號

12900 Snow Road, Parma, OH 44130, U.S.A.

國籍：(中文/英文)

美國/U.S.A.

三、發明人：(共 4 人)

姓名：(中文/英文)

1. 布萊恩柏曼/BOWMAN, BRIAN

2. 特倫斯派翠克維爾斯/WELLS, TERRENCE PATRICK

3. 湯馬斯威廉維伯/WEBER, THOMAS WILLIAM

4. 詹姆士 J. 帕夫利辛/PAVLISIN, JAMES J.

國 籍：(中文/英文)

1. 英國/United Kingdom

2. ~ 4. 美國/U.S.A.

四、聲明事項：

☐ 主張專利法第二十二條第二項 ☐ 第一款或 ☐ 第二款規定之事實，其事實發生日期為： 年 月 日。

☒ 申請前已向下列國家（地區）申請專利：

【格式請依：受理國家（地區）、申請日、申請案號 順序註記】

☒ 有主張專利法第二十七條第一項國際優先權：

美國 2004.01.20 10/760,947

☐ 無主張專利法第二十七條第一項國際優先權：

☐ 主張專利法第二十九條第一項國內優先權：

【格式請依：申請日、申請案號 順序註記】

☐ 主張專利法第三十條生物材料：

☐ 須寄存生物材料者：

國內生物材料 【格式請依：寄存機構、日期、號碼 順序註記】

國外生物材料 【格式請依：寄存國家、機構、日期、號碼 順序註記】

☐ 不須寄存生物材料者：

所屬技術領域中具有通常知識者易於獲得時，不須寄存。

國 籍：(中文/英文)

1. 英國/United Kingdom

2. ~ 4. 美國/U.S.A.

四、聲明事項：

☐ 主張專利法第二十二條第二項 ☐ 第一款或 ☐ 第二款規定之事實，其事實發生日期為： 年 月 日。

☒ 申請前已向下列國家（地區）申請專利：

【格式請依：受理國家（地區）、申請日、申請案號 順序註記】

☒ 有主張專利法第二十七條第一項國際優先權：

美國 2004.01.20 10/760,947

☐ 無主張專利法第二十七條第一項國際優先權：

☐ 主張專利法第二十九條第一項國內優先權：

【格式請依：申請日、申請案號 順序註記】

☐ 主張專利法第三十條生物材料：

☐ 須寄存生物材料者：

國內生物材料 【格式請依：寄存機構、日期、號碼 順序註記】

國外生物材料 【格式請依：寄存國家、機構、日期、號碼 順序註記】

☐ 不須寄存生物材料者：

所屬技術領域中具有通常知識者易於獲得時，不須寄存。

九、發明說明：

我們布萊恩柏曼/BOWMAN, BRIAN(大英聯合國公民，居住在俄亥俄州(Ohio)西湖(Westlake)史吾德(Sherwood)道 27750；特倫斯派翠克維爾斯/WELLS, TERRENCE PATRICK(美國公民，居住在俄亥俄州史聰市(Strongsville)莫雷耳園(Morar Circle)20342)；湯馬斯威廉維伯/WEBER, THOMAS WILLIAM(美國公民，居住在俄亥俄州克里夫蘭(Cleveland)布魯克賽(Brookside)道 6034)；及詹姆士 J. 帕夫利辛/PAVLISIN, JAMES J.(美國公民，居住在俄亥俄州克里夫蘭西 135 街 3452)已熟知已發明出一種新型且有用的"石墨電極用端面封止"。

【發明所屬之技術領域】

發明背景

工藝範圍

本發明係關於一種石墨電極用端面封止；及一種用來製備本發明的端面封止之方法。更特別的是，本發明係關於一種有利地由一經膨脹的石墨顆粒所形成之封止，其使用在石墨電極的端面處以保護電極接頭的表面不氧化。

【先前技術】

技藝背景

在鋼鐵工業中會使用石墨電極，以在電熱熔爐中熔化使用來形成鋼的金屬及其它原料。可藉由讓電流通過複數個電極(通常為三個)且在電極與金屬間形成電弧而產生熔融金屬所需的熱。經常會使用超過 100,000 安培的電流。所產生

的高溫可熔化金屬及其它原料。通常來說，在鋼熔爐中所使用的電極每個皆由一電極圓柱(亦即，連結一串各別電極所形成的單一圓柱)所組成。在此方法中，當電極在此熱製程期間消耗掉時，可將置換電極連結至該圓柱以維持延伸進該熔爐的圓柱長度。

通常來說，電極可經由功能為連結鄰接電極末端的栓銷(有時指為螺紋接管)來連結至圓柱。典型上，該栓銷會採用相反的公螺紋部分形式，且該電極的至少一端包含一能與該栓銷的公螺紋部分配對之母螺紋部分。因此，當在二個電極的終端處，將該栓銷之每個相反的公螺紋部分旋入母螺紋部分時，那些電極會變成連結至該電極圓柱。通常來說，該鄰接電極的連結末端及於其之間的栓銷在技藝中指為接頭。

或者，該電極可製成一端具有經加工成的公螺紋突出物或附根，而另一端具有經加工成的母螺紋承窩，如此，該電極可藉由將一個電極的公附根旋入第二電極的母承窩而連結，因此形成一電極圓柱。在此具體實施例中，二個鄰接電極之連結末端在技藝中亦指為接頭。

因為該電極與該接頭(及更確切來說，為該電極圓柱全部)會經歷及獲得極大的熱應力，故必需小心平衡一些機械/熱因子(諸如強度、熱膨脹及抗裂性)，以避免該電極圓柱或各別電極受損或被破壞。例如，該電極的縱向(即，沿著電極/電極圓柱的長度)熱膨脹(特別是其速率與該栓銷不同時)會強迫該接頭分開，而減低該電極圓柱傳導電流的效率。想要讓該電極的橫軸(即，橫過該電極/電極圓柱的直徑)之熱膨

脹超過該栓銷一定的量，以在該栓銷與電極間形成一結實的連接；但是，若該電極的橫軸熱膨脹大大超過該栓銷時，則會對電極產生損傷或該接頭會分離。此再次會造成電極圓柱的效率減低；或若此損傷如此嚴重而會讓該電極圓柱在接頭部分處受損壞時，該圓柱甚至會被破壞。

再者，該電極圓柱的熱及機械應力所曝露出之另一個影響為會在二個鄰接電極間的電極接頭中形成間隙。再者，於建造該栓銷與母承窩或公附根與母承窩時，會故意在二個鄰接電極間之接頭中製成存在有一間隙。當在接頭中形成此間隙時(故意或非故意)，該栓銷或公附根的螺紋與其它接頭表面會發生氧化反應，而造成材料損失及所謂的"縮頸"。當從接頭表面氧化掉足夠的材料而變窄時就是發生縮頸，因此會減弱在二個端面間之接合。縮頸會減低電極圓柱的電流傳導效率、減低接頭的機械強度，最終會導致接頭損壞及電極圓柱毀滅性損失。例如，當縮頸發生至明顯程度時，電極圓柱在熔爐中於使用時所經歷的正常振動會導致該栓銷或公附根或由該栓銷或承窩所嚙合之母電極斷裂及破裂、讓接頭分離及在受影響的接頭下之電極圓柱損失。

在美國專利案號 3,540,764 中，潑斯(Paus)及雷維拉克(Revilock)建議使用經膨脹的石墨間隔器，其將該間隔器配置在毗連電極之端面間以增加接頭的導電性及抗熱應力性。但是，潑斯及雷維拉克間隔器的本質及其放置會在接頭中產生間隙，因此，其在其它方面上無法對接頭鬆弛及可能的損壞有所貢獻。

因此，所欲的是一種封止，其可使用來減少在石墨電極接頭的表面部分處之氧化反應，而沒有明顯減低電極性能。亦高度所欲之是，能達成這些性質的利益而沒有使用大量的昂貴材料。

【發明內容】

發明概述

本發明的觀點為提供一種石墨電極用端面封止。

本發明的另一個觀點為提供一種石墨電極用端面封止，其可減少或消除電極接頭表面的氧化反應。

本發明的更另一個觀點為提供一種石墨電極用端面封止，其可製造出具有經改善的強度及穩定性之電極圓柱接頭。

本發明的仍然另一個觀點為一種石墨電極接頭，與技藝習知的石墨電極接頭比較，其具有經改善的抗氧化性。

這些及其它將由專業人士在回顧下列描述後明瞭之觀點，可藉由提供一包含二個連結的石墨電極與一插入在該電極間的封止之電極接頭而達成，該封止包含一可壓縮的材料，特別是片狀剝離石墨之壓縮顆粒。該封止材料較佳包含一氧化速率等於或少於電極之材料。在較佳的具體實施例中，該封止在電極間延伸之方向上的導電性大於與上述方向正交的方向。為了達成此目的，該封止應該有利地包含一片狀剝離石墨之壓縮顆粒之螺旋捲繞薄片。

形成該接頭的二個連結電極每個皆可在其中包含一經加工成的母螺紋承窩，更包含一含相反的公螺紋部分之栓銷

(其可與該電極之母螺紋承窩嚙合)，以形成該接頭。此外，該電極之一可包含一公螺紋附根而另一電極可包含一母螺紋承窩，其中該公螺紋附根可與該母螺紋承窩嚙合，以形成該接頭。

爲了形成本發明的封止，較佳係提供一片狀剝離石墨之壓縮顆粒薄片，然後繞著例如一直徑等於該封止的內部開口之支撐物捲繞，以形成一合適使用在電極間之電極接頭中的螺旋捲繞封止。該封止的外徑通常應該等於該電極接頭的外徑且其具有一內部開口，但是在該片狀剝離石墨之壓縮顆粒之螺旋捲繞薄片層間不必需插入一黏著劑。

除了由可壓縮的材料(諸如片狀剝離石墨之壓縮顆粒之螺旋捲繞薄片)形成外，本發明的封止可諸如藉由模塑來塑成，以便增加其壓縮性。例如，該薄片可經模塑，以便當沿著中間放置有該封止之二電極或其之一的端面平面來觀看時，其會呈現出凹槽形狀。在該凹槽的任一端處之錐形"臂"間的空間甚至可提供較大的壓縮潛力。再者，可在該凹槽空間中放置春糊、膠泥或其它油灰狀材料，以進一步抑制氧化反應。另一種可增加該螺旋捲繞片狀剝離石墨薄片的壓縮性之方法爲將該封止表面形成"波紋狀"或"波浪狀"，此同樣亦藉由模塑來達成。當然，該封止的凹槽或波浪狀表面爲與各別電極端面毗連的表面之一或二者。

需了解的是，前述的一般說明及下列的詳細說明二者皆提供本發明之具體實施例，且意欲對如本發明之理解、所主張的本質及特徵提供一總覽或基本機構。亦包括伴隨的圖形

以對本發明提供進一步了解，且將其併入並構成專利說明書的一部分。該圖形闡明本發明的多種具體實施例，且其與所提供的說明一起來描述本發明之原理及操作。

【實施方式】

較佳具體實施例之詳細說明

石墨電極之製造首先可將包含經煅燒的煤焦、瀝青及選擇性中間相瀝青或以 PAN 為基礎的碳纖維之微粒組成與一原料混合物結合。更特別的是，將經壓碎、篩選及研磨之經煅燒的石油煤焦與煤焦油瀝青黏合劑混合，以形成該混合物。根據該物件的最後用途來選擇該經煅燒的煤焦之顆粒尺寸，且此亦在技藝中的技術範圍內。通常來說，在使用於鋼加工的石墨電極中，在該混合物中使用平均直徑最高約 25 毫米(mm)的顆粒。該微粒組成包括一含煤焦粉末的小顆粒尺寸摻合料較佳。可摻入該小顆粒尺寸摻合料的其它添加劑包括氧化鐵類(以抑制因其與煤焦顆粒內的碳鍵結而釋放出的硫所造成之膨鬆)、煤焦粉末及油類或其它潤滑劑(以使該混合物容易擠壓出)。

在已製備微粒組成、瀝青黏合劑等等之混合物後，主體可藉由擠壓過一沖模或在習知的形成模型中模塑而形成(或塑成)，以形成一所謂的未火燒的原料。在接近瀝青的軟化點之溫度(通常約 100℃ 或較高)下進行此形成(不論是透過擠壓或模塑)。該沖模或模型可以實質上最後的形式及尺寸來形成該物件，雖然通常需要對所完成的物件來進行加工(至少非提供諸如螺紋結構不可)。可變化該未火燒的原料之

尺寸；對電極來說，該直徑可在約 220 毫米至 700 毫米間變化。

在擠壓後，藉由在約 700℃ 至約 1100℃ 間(在約 800℃ 至約 1000℃ 間更佳)之溫度下烘烤來熱處理該未火燒的原料，以將該瀝青黏合劑碳化成固體瀝青焦炭，以提供該物件具有永久形式、高機械強度、好的熱傳導係數及較低的電阻，因此形成一經碳化的原料。在相當缺乏空氣下烘烤該未火燒的原料，以避免氧化。應該在升溫速率為每小時約 1℃ 至約 5℃ 下升溫至最後溫度下來進行烘烤。在烘烤後，可讓該經碳化的原料浸漬煤焦油或石油瀝青或在工業中已熟知的其它型式之瀝青或樹脂一或多次，以在該原料的任何開口孔洞中沉積額外的煤焦。然後，每次浸漬皆接著一次額外的烘烤步驟。

在烘烤後，然後進行石墨化該經碳化的原料。藉由在最後溫度約 2500℃ 至約 3400℃ 間熱處理一段足夠時間來石墨化，以造成在煤焦與瀝青焦炭黏合劑中的碳原子從差的排列狀態轉換成石墨的晶體結構。可有利地將該經碳化的原料維持在溫度至少約 2700℃ 下來進行石墨化，更有利的溫度為在約 2700℃ 至約 3200℃ 間。在這些高溫下，除了碳以外之元素會揮發及以蒸氣逃逸。使用本發明之方法所需維持在石墨化溫度下之時間不多於約 18 小時，更確切為不多於約 12 小時。石墨化約 1.5 至約 8 小時較佳。一旦完成石墨化，可將所完成的物件切割成所欲之尺寸，然後機械加工或形成其最後組態。

本發明的封止包含一配置在鄰接電極之端面間的電極

接頭中之材料。該封止較佳包含一經篩選的材料，以便填充在鄰接電極間之間隙中。為此目的，該封止的厚度應該有利地在約 1 毫米至約 25 毫米之間，更有利的厚度為約 3 毫米至約 12 毫米。此外，該封止應該從該電極接頭的周圍朝向該接頭的中心徑向延伸，而終止在該周圍與螺紋栓銷或公螺紋附根間。最佳的是，該封止的半徑應該大約等於中間配置有該封止的電極。因此，本發明之封止的半徑應該在約 11 公分至約 37 公分之間(當與具有圓形截面的石墨電極一起使用時)，更佳約 20 公分至約 30 公分，且其中心開口的直徑大約等於或大於該螺紋栓銷或公附根的直徑(在其各別的最大位置處)；更特別的是，該封止的中心開口直徑應該為中間配置有該封止的電極之直徑的約 50%至約 85%。在最佳的具體實施例中，該封止的中心開口應該大約等於該螺紋栓銷或公附根的直徑(在其各別的最大位置處)。

製造本發明之封止的材料或該封止的定向或配置應該為，該封止可被壓縮以補償在鄰接電極間之間隙差異及改變，其可根據使用來連接該鄰接電極的方法，和由於當使用在熔爐中時該接頭所曝露的不同機械及熱應力而變化。此外，該封止材料的壓縮性可幫助保證在該封止與中間配置有該封止的電極間不會有空氣通過。

形成本發明之封止的材料應該作用以減低該電極接頭螺紋的氧化速率。如此，其必需減低(或物理阻礙)該螺紋在熔爐中曝露至熱空氣。更佳的是，該封止材料之氧化速率應該等於或比形成該接頭的電極慢。最佳的是，該封止材料應

該以儘可能慢的速率氧化，同時可滿足壓縮性的需求。

合適用來形成本發明之封止的材料包括紙、硬紙板、漿糊、編織繩等等。特別佳的材料之一為經膨脹(或片狀剝離)的石墨之壓縮顆粒，其有時指為可撓石墨。片狀剝離石墨之壓縮顆粒薄片特別有用。

在形成本發明之封止上有用的石墨有碳結晶形式，其包含一些在平坦層平面中具共價鍵結而在平面間的鍵結較弱之原子。藉由以夾層劑(例如硫酸及硝酸溶液)來處理石墨顆粒(諸如天然片狀石墨)，該石墨的結晶結構會反應而形成一石墨與該夾層劑的化合物。該經處理的石墨顆粒此後指為"夾層石墨顆粒"。在曝露至高溫後，在石墨中的夾層劑會揮發，而造成該夾層石墨顆粒在"c"方向上(即在垂直於該石墨的結晶平面方向上)的尺寸，會以折疊似的方式膨脹成其原始體積的約 80 或更多倍。該片狀剝離石墨顆粒外觀像蠕蟲，因此通常指為蠕蟲粒(worm)。該蠕蟲粒可一起壓縮成一可撓薄片，其不像原始石墨薄片而可形成及切割成不同形狀。

合適於使用在本發明的薄片之石墨起始材料包括高石墨碳材料，其能夾入有機及無機酸和鹵素，然後當曝露至熱時會膨脹。這些高石墨碳材料的石墨化程度約 1.0 最佳。如在此公告中所使用，名稱"石墨化程度"指為根據下式之 g 值：

$$g = \frac{3.45 - d(002)}{0.095}$$

其中 d(002)為在結晶結構中之碳石墨層間的間隔，以埃單位度量。在石墨層間之間隔 d 可藉由標準 X 射線繞射技術來測量。測量與米勒指數(002)、(004)及(006)相符合的繞射

波峰位置，並使用標準最小平方技術(其可最小化全部這些波峰的總誤差)來導出間隔。高石墨碳材料的實例包括來自不同來源的天然石墨和其它含碳材料(諸如利用化學氣相沉積所製備的碳)及其類似物。天然石墨最佳。

可使用於本發明之薄片的石墨起始材料可包含非碳組分，只要該起始材料的結晶結構能維持所需的石墨化程度及它們能片狀剝離。通常來說，任何含碳材料、擁有所需的石墨化程度且可片狀剝離的結晶結構皆合適使用於本發明。此石墨的灰分含量少於 20 重量百分比比較佳。更佳的是，使用於本發明的石墨之純度至少約 94%。在最佳的具體實施例中，所使用的石墨純度至少約 99%。

用來製造石墨薄片的一般方法則由仙(Shane)等人描述在美國專利案號 3,404,061 中，此公告以參考之方式併於本文。在仙等人之方法的典型實行中，可藉由將天然石墨薄片分散在包含例如硝酸與硫酸之混合物的溶液中而讓薄片具有夾層，其有利的程度為每 100 重量份之石墨薄片(pph)含約 20 至約 300 重量份的夾層溶液。該夾層溶液包括氧化及其它在技藝中熟知的夾層劑。其實例包括包含氧化劑及氧化混合物那些，諸如含硝酸、氯酸鉀、鉻酸、過錳酸鉀、鉻酸鉀、重鉻酸鉀、過氯酸及其類似物之溶液；或混合物，諸如例如濃硝酸與氯酸鹽、鉻酸與磷酸、硫酸與硝酸、或強有機酸(例如三氟醋酸)與可溶於有機酸之強氧化劑的混合物。再者，可使用電位能來引發石墨的氧化反應。可使用電解氧化反應來引進石墨結晶的化學物種包括硫酸和其它酸。

在較佳的具體實施例中，該夾層劑為一硫酸(或硫酸與磷酸)與氧化劑(即，硝酸、過氯酸、鉻酸、過錳酸鉀、過氧化氫、碘或過碘酸)之混合物的溶液或其類似物。雖然較不佳，但該夾層溶液可包括金屬鹵化物，諸如氯化鐵及與硫酸混合的氯化鐵；或鹵化物，諸如溴(如為溴與硫酸之溶液)或在有機溶劑中的溴。

夾層溶液的量可從約 20 變化至約 150pph，更典型約 50 至約 120pph。在該薄片經夾層後，從該薄片排出任何過量溶液且以水清洗該薄片。此外，該夾層溶液的量可限制在約 10 至約 50pph 之間，此可准許消除洗滌步驟，如在美國專利案號 4,895,713 中所教導及描述，此公告於此亦以參考方式併入本文。

經夾層溶液處理的片狀石墨顆粒可選擇性與一選自於下列的還原有機試劑接觸(例如，藉由混合)：醇類、糖類、醛類及酯類；其可在 25℃ 至 125℃ 之溫度範圍內與氧化夾層溶液的表面薄膜反應。合適的特定有機試劑包括十六醇、十八醇、1-辛醇、2-辛醇、癸醇、1,10-癸二醇、癸醛、1-丙醇、1,3-丙二醇、乙二醇、聚丙二醇、右旋糖、果糖、乳糖、蔗糖、馬鈴薯澱粉、單硬脂酸乙二醇酯、二苯甲酸二甘醇酯、單硬脂酸丙二醇酯、單硬脂酸甘油酯、草酸二甲酯、草酸二乙酯、甲酸甲酯、甲酸乙酯、抗壞血酸及木質素衍生的化合物(諸如木質硫酸鈉)。合適的有機還原劑量為該片狀石墨顆粒的約 0.5 至 4 重量 %。

在夾層前、期間或立即之後施加使用膨脹輔助劑亦可提

供改良處。在這些改良當中，其可降低片狀剝離溫度及增加膨脹體積(亦指為"蠕蟲粒體積")。在此上下文中的膨脹輔助劑可有利地指為能足夠溶於該夾層溶液中以在膨脹上獲得改良之有機材料。使用更狹窄而專門包含碳、氫及氧的此型式有機材料較佳。已發現羧酸特別有效。合適可有用作為膨脹輔助劑的羧酸可選自於芳香族、脂肪族或環脂族、直鏈或分枝鏈、飽和及不飽和的單羧酸、二羧酸及多元羧酸，其具有至少 1 個碳原子及最高約 15 個碳原子較佳，其可以有效量來溶於該夾層溶液中以提供該片狀剝離的一或多個觀點一可度量的改良。可使用合適的有機溶劑來改善於該夾層溶液中之有機膨脹輔助劑的溶解度。

典型的飽和脂肪族羧酸實例有諸如式 $\text{H}(\text{CH}_2)_n\text{COOH}$ 那些(其中 n 為數字 0 至約 5)，其包括甲酸、醋酸、丙酸、丁酸、戊酸、己酸及其類似物。亦可使用酞或反應性羧酸衍生物(諸如烷基酯)來取代羧酸。典型的烷基酯有甲酸甲酯及甲酸乙酯。硫酸、硝酸及其它熟知的水性夾層劑具有分解甲酸(最終成為水及二氧化碳)的能力。因此，可在將該薄片浸漬於水性夾層劑之前，有利地讓甲酸及其它敏感的膨脹輔助劑與該片狀石墨接觸。典型的二羧酸有具有 2-12 個碳原子的脂肪族二羧酸，特別是草酸、反丁烯二酸、丙二酸、順丁烯二酸、琥珀酸、戊二酸、己二酸、1,5-戊二羧酸、1,6-己二羧酸、1,10-癸二羧酸、環己烷-1,4-二羧酸；及芳香族二羧酸，諸如酞酸或對酞酸。典型的烷基酯有草酸二甲酯及草酸二乙酯。典型的環脂酸為環己烷羧酸；及典型的芳香族羧

酸有苯甲酸、萘甲酸、胺茴酸、對胺基苯甲酸、水楊酸、鄰、間及對甲苯酸、甲氧基及乙氧基苯甲酸、乙醯乙醯胺基苯甲酸及乙醯胺基苯甲酸、苯醋酸及萘甲酸。典型的羥基芳香酸有羥基苯甲酸、3-羥基-1-萘甲酸、3-羥基-2-萘甲酸、4-羥基-2-萘甲酸、5-羥基-1-萘甲酸、5-羥基-2-萘甲酸、6-羥基-2-萘甲酸及 7-羥基-2-萘甲酸。在多元羧酸當中顯著的有檸檬酸。

該夾層溶液為水性，且較佳包含一定量從約 1 至 10% 的膨脹輔助劑，此量可有效地增進片狀剝離。在該膨脹輔助劑於浸入水性夾層溶液前或後與片狀石墨接觸的具體實施例中，利用合適的方法(諸如 V 混合器)讓該膨脹輔助劑與石墨混合，其典型的量為該片狀石墨之約 0.2% 至約 10 重量%。

在夾層該片狀石墨，接著讓該已塗佈夾層劑的夾層片狀石墨與有機還原劑混合後，將該混合物曝露至 25°C 至 125°C 的溫度範圍，以促進該還原劑與夾層物塗層反應。加熱週期最高約 20 小時，在溫度高於上述提及的範圍下可具有較短的加熱週期，例如至少約 10 分鐘。在較高溫度下，可使用半小時或較少的時間，例如，10 至 25 分鐘的級數。

經因此處理的石墨顆粒有時指為"夾層石墨顆粒"。在曝露至高溫(例如，溫度至少約 160°C，特別是約 700°C 至 1200°C 及較高)後，該夾層石墨顆粒會在 c 方向上(即，在與構成石墨顆粒的結晶平面垂直之方向上)，以折疊似的方式膨脹成其原始體積的約 80 至 1000 或更多倍。該經膨脹(即，片狀剝離)的石墨顆粒外觀呈蠕蟲狀，因此通常指為蠕蟲粒。該

蠕蟲粒可一起壓縮成可撓薄片，其不像原始石墨薄片而可形成及切割成不同形狀，且可藉由如之後所描述的變形機械衝擊來提供小的橫軸開口。

黏結可撓的石墨薄片與箔以具有好的處理強度，且合適地壓縮(例如，藉由輥加壓)至厚度約 0.075 毫米至 3.75 毫米，典型的密度為每立方公分約 0.1 至 1.5 克/立方公分(g/cc)。可將約 1.5-30 重量%的陶瓷添加劑與夾層石墨薄片混合(如描述在美國專利案號 5,902,762 中，其以參考之方式併於本文)，以在最後的可撓石墨產物中提供經提高的樹脂浸漬。該添加劑包括長度約 0.15 至 1.5 毫米的陶瓷纖維顆粒。顆粒寬度可合適地從約 0.04 至 0.004 毫米。該陶瓷纖維顆粒不具反應性且不會黏附至石墨，且在溫度最高約 1100°C (較佳為約 1400°C 或較高)下穩定。合適的陶瓷纖維顆粒可由經浸漬的石英玻璃纖維、碳及石墨纖維、氧化鋯、氮化硼、碳化矽及氧化鎂纖維、天然產生的無機纖維(諸如偏矽酸鈣纖維、矽酸鋁鈣纖維、氧化鋁纖維)及其類似物形成。

有時，該可撓的石墨薄片亦可有利地以樹脂處理，且該經吸收的樹脂在硬化後可提高該可撓的石墨薄片之防潮性及處理強度(即硬性)和"固定"該薄片的形態。合適的樹脂含量較佳為至少約 5 重量%，更佳為約 10 至 35 重量%及合適地最高約 60 重量%。已發現在本發明之實行中特別有用的樹脂包括以丙烯酸、環氧基及酚為基礎的樹脂系統、以氟為基礎的聚合物或其混合物。合適的環氧樹脂系統包括以二縮水甘油醚或雙酚 A(DGEBA)為主的那些及其它多官能基樹脂系

統；可使用的酚樹脂包括酚醛樹脂及酚醛清漆酚酸塑膠。除了樹脂外或取代樹脂，該可撓的石墨可選擇性浸漬纖維及/或鹽類。

由於該石墨顆粒之配向與該薄片之主要相對、平行的表面平行，該可撓的石墨薄片材料具有明顯的各向異性程度，該各向異性程度會在輥壓該薄片材料以增加密度後增加。在經輥壓的各向異性薄片材料中，該厚度(即，與該相對、平行的薄片表面垂直之方向)包含"c"方向；沿著該長度及寬度變化的方向(即，沿著或平行該相對、主要的表面)包含"a"方向；該薄片的"c"及"a"方向之熱及電性質非常不同，其大小可以級數來計。

可使用因此形成之可撓的石墨薄片，讓其形成具有所需的中心開口；或可形成數層此可撓的石墨薄片之積層(而沒有層間黏著劑)，且可以此方式使用作為本發明的封止。最佳的是，雖然，因為經膨脹的石墨之壓縮顆粒薄片之各向異性本質，該石墨薄片封止的定向應該為該"a"方向(其為與該薄片的主要相對表面平行之方向)方向性排列在該電極之端面間。在此方法中，該材料於"a"方向中的較高導電性將穿越該接頭而改善導電度(如與"c"方向相反)。

第 1 圖闡明本發明的封止之一個具體實施例，且其由參考符號 10 標示。封止 10 包含一可撓的石墨之螺旋捲繞薄片，且其"a"方向通過該封止 10 的厚度而非沿著其表面。封止 10 可例如藉由將一或多片可撓的石墨薄片繞著支撐物 100(其直徑等於封止 10 的中心開口之所欲之直徑"d")捲繞

而形成。該薄片捲繞著支撐物 100 捲繞，直到達成半徑等於封止 10 所欲之半徑；此可產生一螺旋捲繞可撓的石墨圓柱 20，其可切成具有所欲之厚度之各別的封止 10 (透過支撐物 100 或在移除支撐物 100 之後)。在此方法中，將較高導電度的 "a" 方向配置成通過封止 10 的厚度。可選擇性將一黏著劑插入該封止 10 之迴圈間，以防止該經螺旋捲繞的封止 10 展開。

此外，可藉由將一或多片可撓的石墨薄片繞著支撐物 100 捲繞來形成封止 10，直到達成半徑等於封止 10 之所欲之半徑；然後，將該螺旋捲繞圓柱 20 壓縮成最後所欲之厚度及形狀。更確切來說，如上述討論，可使用壓縮方法將凹槽或波浪形狀模塑(例如，藉由沖模模塑或其類似方法)到封止 10 上(如各別闡明在第 6 及 7 圖)，而具有臂狀物 10a 及 10b 或脊狀物 10c(其與電極 30 及/或 40 毗連)。這些形狀可對封止 10 提供甚至較大的壓縮性。

將封止 10 配置在形成電極接頭之鄰接石墨電極的端面之間。例如，如闡明在第 3 圖，當使用已加工成公螺紋附根 32 的石墨電極 30 時，可將封止 10 繞著附根 32 放置在電極 30 的端面 34 上。然後，當電極 30 與經加工成母承窩(無顯示)的鄰接電極配對時，封止 10 因此配置在該鄰接電極之端面間。對闡明在第 4 圖之電極 40 來說亦相同，但其使用栓銷 42 而非附根。

可有利地在電極 30 的製備期間，在形成設備處或在熔爐位置處進行將封止 10 配置在電極 30 上，但是必需在將其

帶至熔爐上的位置之前負載到電極圓柱上，以減少形成接頭的操作步驟(此經常會在相當危險的環境中進行)。同樣地，當將栓銷 42 預先安裝至電極 40 時，可同時將封止 10 配置在電極 40 上。再者，當封止 10 形成凹槽形狀(如顯示在第 6 圖)，且該凹槽分配填充上漿糊或膠泥等等時，可使用脫模襯墊以保護該漿糊或膠泥不受污物、粉塵或其它不想要而可能會黏附至其的物質污染。

因此，在使用時，將電極端面封止 10 配置在鄰接電極 50a 與 50b 間之電極接頭 50 中，如闡明在第 5 圖。因為封止 10 可壓縮且可有利地以等於或比電極 50a 及 50b 慢的速率氧化，其可減少氧進入在電極端面 50a 與 50b 間之接頭 50，因此可減少或消除螺紋部分或栓銷 32 或公附根 42 及/或其它接頭 50 表面之氧化反應，而延長接頭 50 的壽命及功能。

在此申請案中所指出之所引用的專利公告及出版品全部皆以參考之方式併於本文。

上述說明意欲使熟知此技藝之人士能夠實行本發明。於此不意欲詳述全部可能的變化及改質，而此將由熟知的人員在讀取說明後變明瞭。但是，所欲之是，此些改質及變化全部包括在由下列申請專利範圍所定義之本發明的範圍內。本申請專利範圍意欲涵蓋能有效滿足本發明所所欲之目標之任何所指出的元件及步驟安排或順序，除非上下文有特別相反地顯示。

【圖式簡單說明】

第 1 圖為根據本發明之石墨電極用端面封止的側視透視

圖。

第 2 圖為從第 1 圖之端面封止所衍生出的螺旋捲繞可撓石墨結構之側視透視圖。

第 3 圖為一公螺紋石墨電極的部分側視透視圖，在其上面具有一根據本發明之端面封止。

第 4 圖為一石墨電極的部分側視透視圖，其具有一在其中刻有螺紋的栓銷，且在其上面具有一根據本發明之端面封止。

第 5 圖為一電極接頭的側視平面圖，在其中具有一根據本發明的端面封止。

第 6 圖為一根據本發明之石墨電極用端面封止的一個具體實施例之側視截面圖。

第 7 圖為一根據本發明之石墨電極用端面封止的另一個具體實施例之側視截面圖。

【元件符號說明】

10	封止
10a	臂狀物
10b	臂狀物
10c	脊狀物
20	石墨圓柱
30	電極
32	公螺紋附根
34	端面
40	電極

42	栓 銷
50	電 極 接 頭
50 a	電 極
50 b	電 極
100	支 撐 物

五、中文發明摘要：

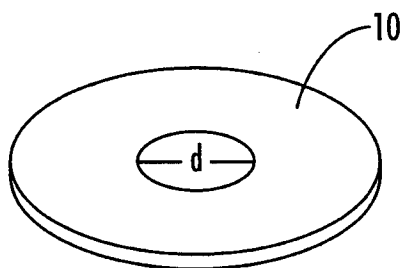
本發明顯示出一種電極接頭，該接頭包含二個連結的石墨電極且具有一插入該電極之間的封止，該封止由一氧化速率等於或少於電極之材料組成。

六、英文發明摘要：

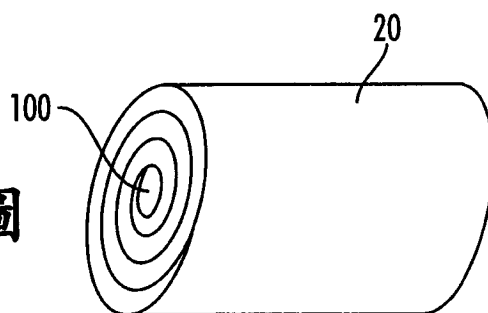
An electrode joint is presented, the joint including two joined graphite electrodes and having a seal interposed between the electrodes, the seal composed of a material having an oxidation rate equal to or less than that of the electrodes.

1/2

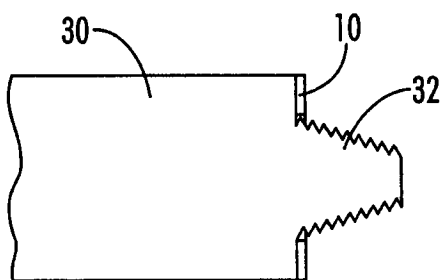
第 1 圖



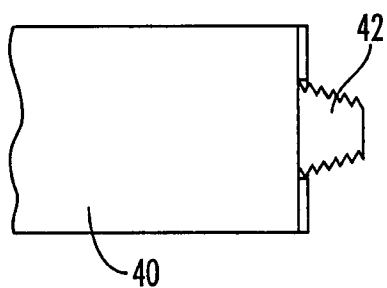
第 2 圖



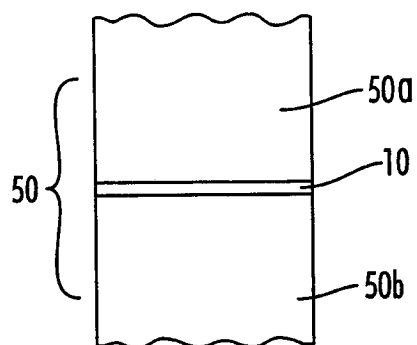
第 3 圖



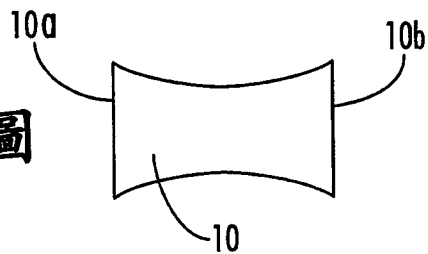
第 4 圖



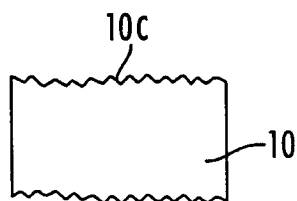
第 5 圖



第 6 圖



第 7 圖



七、指定代表圖：

(一)本案指定代表圖為：無。

(二)本代表圖之元件符號簡單說明：

無。

八、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：

第 94100836 號「石墨電極用端面封止」專利案

(2006 年 7 月修正)

十、申請專利範圍：

1. 一種電極接頭，其包含二個連結的石墨電極，其各具有一端面且具有一插入該電極之間的封止，該封止包含一具有氧化速率的片狀剝離石墨的壓縮顆粒之螺旋捲繞薄片，其可減少該電極接頭表面之氧化速率。
2. 如申請專利範圍第 1 項之接頭，其中該封止可壓縮。
3. 如申請專利範圍第 1 項之接頭，其中該封止在電極間延伸的方向上之導電性比在與上述方向正交之方向上大。
4. 如申請專利範圍第 1 項之接頭，其中該二個連結的電極每個皆在其中包含一經加工成的母螺紋承窩，且更包含一含相反的公螺紋部分之栓銷，其可與該電極之母螺紋承窩嚙合，而形成該接頭。
5. 如申請專利範圍第 1 項之接頭，其中該電極之一包含一公螺紋附根而另一電極包含一母螺紋承窩，其中該公螺紋附根可與該母螺紋承窩嚙合而形成該接頭。
6. 一種用來製備使用於電極接頭之封止之方法，該方法包括提供一片狀剝離石墨的壓縮顆粒之薄片，且捲繞該薄片以形成一適合使用在電極端面間之電極接頭中的螺旋捲繞封止。
7. 如申請專利範圍第 6 項之方法，其中該封止具有一通常等於該電極接頭外徑之外徑及一中心開口。
8. 如申請專利範圍第 7 項之方法，其中在片狀剝離石墨的壓

縮顆粒之螺旋捲繞薄片層間插入一黏著劑。

9.如申請專利範圍第 7 項之方法，其中該片狀剝離石墨之壓縮顆粒薄片繞著一直徑等於該封止中心開口之支撐物捲繞。

10.如申請專利範圍第 9 項之方法，其中將該捲繞一支撐物之片狀剝離石墨之壓縮顆粒薄片，在捲繞後切割成所欲之厚度。

11.一種電極接頭用封止，其包含一氧化速率等於或少於電極之材料，其中該封止包含一片狀剝離石墨之壓縮顆粒之螺旋捲繞薄片。

12.如申請專利範圍第 11 項之封止，其中該封止係可壓縮。

13.如申請專利範圍第 12 項之封止，其中該封止包含片狀剝離石墨之壓縮顆粒。

14.如申請專利範圍第 13 項之封止，其中該封止當適當於電極接頭中時，其在電極間延伸之方向中的導電性係大於上述方向正交的方向。

15.如申請專利範圍第 14 項之封止，其中該表面封止具有一凹槽截面。

16.如申請專利範圍第 14 項之封止，其中該封止的表面具有一波浪狀截面。