

(19) DANMARK



PATENTDIREKTORATET
TAASTRUP

(12) FREMLÆGGELSESSKRIFT

(11) 156637 B



(21) Patentansøgning nr.: 4866/81

(51) Int.Cl.⁴ C 01 B 31/02

(22) Indleveringsdag: 03 nov 1981

(41) Alm. tilgængelig: 06 maj 1982

(44) Fremlagt: 18 sep 1989

(86) International ansøgning nr.: -

(30) Prioritet: 05 nov 1980 JP 154653/80

(71) Ansøger: *KOA OIL COMPANY LIMITED; 6-2, Ohte-Machi 2-chome; Chiyoda-ku; Tokyo-to, JP

(72) Opfinder: Kosaku *Noguchi; JP, Honami *Tanaka; JP, Yukimasa *Kumura; JP, Eiji *Kitajima; JP, Noriyuki *Tsuchiya; JP, Tomonori

*Sunada; JP

(74) Fuldmægtig: Internationalt Patent-Bureau

(54) Fremgangsmåde til fremstilling af mesocarbonmikroperler med ensartet partikelstørrelsesfordeling

(56) Fremdragne publikationer

(57) Sammendrag:

4866-81

Mesocarbonmikroperler med snæver partikelstørrelsesfordeling fremstilles ved at underkaste en tung olie for en primær varmebehandling ved en temperatur T_1 til fremstilling af en beg indeholdende mesofasemikrokugler, afkøling af denne beg en gang til en temperatur, der er mindre end dens blødgøringspunkt, derefter underkastes begen for en sekundær varmebehandling ved en temperatur T_2 , der er større end 300°C og mindre end $(T_1 - 20^{\circ}\text{C})$, afkøling af begen med en afkølingshastighed, der er mindre end 200°C/time , at de mesofasemikrokugler, der udfældes ved den sekundære varmebehandling, bortsepareres, og at der derefter opnås mesofasemikrokugler med i det væsentlige ensartet partikelstørrelse ved solventekstraktion af den resterende beg. Mesofaseperlerne med snæver partikelstørrelsesfordeling, der opnås herved, er særligt velegnede til brug som chromatografipakkemateriale, katalysatorbærere og andre anvendelser.

DK 156637 B

Opfindelsen angår en fremgangsmåde til fremstilling af mesocarbonmikroperler med ensartet størrelsesfordeling, hvor der fremstilles en primær, varmebehandlet beg indeholdende mesofasemikrokugler ved at udsætte en tung olie for en primær varmebehandling og afkøle den således fremstillede beg en gang til en temperatur, der er lig med eller lavere end dens blødgøringspunkt. Med tung olie menes en tung carbonhydridolie stammende fra jordolie, kul, oliesand, olieskifer eller lignende.

Det er kendt, at mesocarbonmikroperler (herefter forkortet "MC") kan opnås ved varmebehandling af en tung olie ved temperaturer på 350 til 500°C til opnåelse af en varmebehandlet beg og separering af optisk anisotrope mikrokugler (mesofasemikrokugler), der dannes i begen ud fra begmatrixen ved solventekstraktion. MC der opnås på denne måde er carbonprecursorer med sfæriske former, der ligger tæt ved perfekte sfærer med diametre på 1 til 100 µm, og som består af kondenserede polycycliske aromater lamineret i en særlig retning. På grund af deres enestående form og krystallinske struktur har disse MC høj elektrisk, magnetisk og kemisk aktivitet, og der forventes en udstrakt anvendelse af dem inden for forskellige områder.

Nærmere angivet er forventningerne store til anvendelsen af disse MC til fremstilling af forskellige industrielle materialer, for eksempel særlige carbonmaterialer, såsom isotrope carbonmaterialer med stor massefylde og carbon med elektrisk modstandsevne, der fremstilles ved carbonisering efter deres støbning, sammensatte materialer såsom elektrisk ledende keramiske materialer, dispersionsforstærkede metaller og elektriske ledende plastarter fremstillet ved carbonisering af MC'erne, som de er, og efterfølgende blanding af det resulterende materiale med andre materialer samt kemiske materialer såsom katalysatorbærere og chromato-

grafipakkemateriale fremstillet ved formning af MC'erne til partikler, som de er, eller efter carbonisering.

Til visse anvendelser såsom til chromatografi-pakkemateriale og katalysatorbærere blandt de oven-nævnte anvendelser kræves det, at MC'erne partikelstørrelse er ensartet i overensstemmelse med angivne størrelser. Imidlertid er partikelstørrelsen for MC'er, der er fremstillet ved en fremgangsmåde, der er afhængig af normal varmebehandling af en tung olie, fordelt over et bredt område (hvilket kan være så bredt som fra 1 til 100 μm i de fleste tilfælde). Følgelig er fremstilling af MC'er med snæver partikelstørrelsesfordeling ved hjælp af en eller anden fremgangsmåde ønsket indenfor mange områder. Til opfyldelse af dette behov beskrives nedenfor nogle fremgangsmåder, der har været påtænkt eller foreslået.

a) En fremgangsmåde ved hvilken en portion med særlige partikelstørrelser udskilles ved sigtning eller ved mekanisk adskillelse af MC'er fremstillet ved en normal fremgangsmåde.

b) En fremgangsmåde, hvorved der ved indblæsning af overhødet damp i en tung olie for derved at omrøre og opvarme olien, således at der udføres en ensartet varmebehandling af den tunge olie, opnås MC'er med snæver partikelstørrelsesfordeling (japansk patentpublikation nr. 9599/1978).

c) En fremgangsmåde, hvorved mesofasemikrokuglernes vækst undertrykkes ved anvendelse af et eller flere additiver (som beskrevet f.eks. i "Tanso" ("Carbon"), nr. 77, side 61 (1974)).

Imidlertid kan det ikke siges, at nogle af disse fremgangsmåder er fuldstændigt tilfredsstillende. Nærmere er det f.eks. vanskeligt ved den ovennævnte fremgangsmåde a) effektivt i industriel skala at klassificere de MC, der er mikrokugler med μm -størrelse. Ved fremgangsmåderne b) og c) er det vanskeligt at opnå

MC'er med perfekt kugleform, og effektiviteten ved at gøre partikelstørrelsen ensartet er stadig utilstrækkelig .

I betragtning af det ovennævnte tekniske standpunkt er det hensigten med opfindelsen at angive en ny fremgangsmåde til fremstilling af MC'er med snæver partikelstørrelsesfordeling.

Som det resultat af intense undersøgelser indenfor det nævnte område vedrørende dannelses- og vækstmekanismen for mesofasemikrokugler ved varmebehandling af tung olie eller beg har det følgende vist sig. Det første er, at såfremt beg, der indeholder mesofasemikrokugler, der er opnået ved varmebehandling af en tung olie, underkastes trinene afkøling, genopvarmning og genafkøling opnås, at MC partikelstørrelsen gøres bemærkelsesværdig ensartet. Det andet er, at det ved at regulere hastigheden af den endelige afkøling er muligt at regulere MC'ernes partikelstørrelse. Fremgangsmåden til fremstilling af MC'er med snæver partikelstørrelsesfordeling ifølge opfindelsen er baseret på og er blevet udviklet ud fra disse opdagelser.

Fremgangsmåden ifølge opfindelsen er ejendommelig ved,

- a) at begen underkastes en sekundær varmebehandling ved en temperatur, der er lig med eller højere end 300°C og som endvidere er lig med eller mindre end den temperatur, der ligger 20°C under temperaturen for den primære varmebehandling,
- b) at begen afkøles med en afkølingshastighed, der er lig med eller mindre end 200°C/time ,
- c) at der fra den således varmebehandlede beg, mens den er i væskeform udskilles uopløste mesofasemikrokugler, udfældede under den sekundære varmebehandling,
- og
- d) at der derefter ved solventekstraktion opnås me-

sofasemikrokugler med i det væsentlige ensartet partikelstørrelse, og dannet i den resterende beg.

Arten, anvendeligheden og yderligere træk ved opfindelsen vil fremgå tydeligere af den følgende detaljerede beskrivelse, der starter med en betragtning af de almene og fundamentale træk ved opfindelsen og slutter med et specifikt udførelseseksempel, der belyser en foretrukken udførelsesform derfor, samt sammenligningseksempler, hvorved der henvises til de medfølgende tegninger og mikrofotografier, hvori

fig. 1(a), 1(b) og 1(c) viser skematiske snit til forklaring af, hvorfor og hvorledes der ved fremgangsmåden ifølge opfindelsen opnås MC'er med snæver partikelstørrelsefordeling;

fig. 1(a) og 4(a) er mikrofotografier (forstørrelse 172X) optaget med et polariserende mikroskop af henholdsvis primært varmebehandlet beg og sekundært varmebehandlet beg;

fig. 2(b) og 4(b) er mikrofotografier optaget med et scannings elektromikroskop af MC'er opnået ved quinolinekstraktion fra henholdsvis primært varmebehandlet beg og sekundært varmebehandlet beg;

fig. 3 og 5 er kurver, der angiver partikelstørrelsesfordelinger for MC'er opnået ved quinolinekstraktion af henholdsvis primært varmebehandlet beg og sekundært varmebehandlet beg; og

fig. 6 og 7 er mikrofotografier (forstørrelse 172X) optaget med et polariserende mikroskop af primært varmebehandlet beg svarende til fig. 2(a).

Årsagen til, at det ved fremgangsmåden ifølge opfindelsen er muligt at gøre partikelstørrelsen ensartet, er ikke helt klar, men den kan anses for at være som følger.

I en beg i en tilstand, hvori den er blevet underkastet en primær varmebehandling og derefter afkølet en gang, er der dispergeret mesofasemikrokug-

ler med forskellige størrelser, som vist i fig. 1(a), på tilsvarende måde som i en beg, der er blevet varmebehandlet efter en almindelig fremgangsmåde, som beskrevet tidligere. Når denne beg genopvarmes, opløses de blandt mesofasemikrokuglerne, hvis opløselighed er høj (dette anses for i det væsentlige at være dem, der dannes ved afkølingstrinnet efter den primære varmebehandling), mens de hvis opløselighed er lav (dette anses for at være dem med en høj grad af varmebehandling, der er dannet ved opvarmningstrinnet) ikke opløses, men aflejres på bunden af karret, som antyd-

5
10
15

et i fig. 1(b). Når begen efter genopvarmning afkøles igen udskilles den mesofasekomponent, der har været opløst, igen som mikrokugler med ensartet partikelstørrelse, som er bestemt af afkølingshastigheden, som antyd-

et i fig. 1(c).

De mesofasemikrokugler, der er uopløselige, og som er aflejret på bunden, akkumuleres, som de er, på bunden, mens de smelter sammen under de ovenfor beskrevne trin. Ved at adskille den øvre fase og den nedre fase, f.eks. ved dekantering, på et trin, hvor matrixbegen bevarer sin flydende form i tilstanden i fig. 1(b) eller 1(c), f.eks. ved en temperatur i størrelsesordenen ca. 200°C, opnås mesofasemikrokugler med ensartet partikelstørrelse i det afkølede materiale i den øvre fase. Ved derefter at udsætte disse mesofasemikrokugler for solventekstraktion opnås MC'er med ensartet partikelstørrelse.

20
25

Ved fremgangsmåden ifølge opfindelsen opvarmes en tung olie, såsom atmosfæretryk-restolie, undertryk-restolie, dekanteringsolie fra katalytisk krakning, termisk krakningstjære eller kultjære, først ved 350 til 500°C og underkastes således en primær varmebehandling. Skønt den specifikke temperatur og tiden for denne primære varmebehandling varierer efter arten af de tunge olier, der anvendes som udgangsmateriale

30
35

(inklusiv materialer, der normalt benævnes beg), foretrækkes det at vælge disse betingelser, således at mængden af quinolinuopløselig begkomponent (dvs. mesofasen) efter den primære varmebehandling vil være
5 5 til 15 vægt%.

Derefter afkøles begen efter den primære varmebehandling til en temperatur, der er lig med eller mindre end dens blødgøringspunkt. Den nedre grænse for køletemperaturen er ikke kritisk og kan være stue-
10 temperatur. Hvis afkølingen ikke udføres til en temperatur, der lig med eller under blødgøringspunktet, vil der ikke foregå nogen væsentlig separering ved aflejring som beskrevet ovenfor under henvisning til fig. 1(b) og 1(c). Der kan være flere årsager hertil, f.eks.
15 en forøgelse af forskellen mellem den specifikke massefylde af mesofasen og matrixbegen samt fjernelsen af β -harpiksen, der findes på overfladen af mesofasen ved en høj temperatur, på grund af afkølingen, og som bidrager til dannelsen af micellestruktur mellem meso-
20 fasen og matrixbegen. Afkølingshastigheden er ikke særlig kritisk og kan være f.eks. op til $400^{\circ}\text{C}/\text{time}$.

Den således afkølede beg udsættes yderligere for en sekundær varmebehandling ved en temperatur, der er lig med eller højere end 300°C og som er lig
25 med eller mindre end den temperatur, der opstår, når 20°C fratrækkes temperaturen for den primære varmebehandling.

Det har vist sig, at såfremt temperaturen til den sekundære varmebehandling er mindre end 300°C ,
30 bliver partikelstørrelsen af MC'erne ikke ensartet. Årsagen til dette kan skyldes det følgende. Den sekundære varmebehandling har den funktion atter at opløse de mesofasemikrokugler, der er dannet ved den primære varmebehandling i matrixbegen, og den funktion at få
35 de mesofasemikrokugler, der ikke opløses, til at aflejres på karrets bund for derved at blive udskilt.

Ved en lav temperatur bliver opløseligheden imidlertid ikke tilstrækkelig stor, og matrixbegens viskositet falder ikke i en grad, der er tilstrækkelig til at give anledning til bundfældning.

5 Det har endvidere vist sig, at såfremt temperaturen ved den sekundære varmebehandling er højere end den øvre grænse for den primære varmebehandlings-temperatur minus 20°C bliver MC'ernes partikelstørrelse ikke ensartet. Årsagen hertil kan være, at
10 i det tilfælde, hvor den sekundære varmebehandling udføres ved en højere temperatur, er resultatet ikke blot genopløsning af de mesofasemikrokugler, der er dannet ved den primære varmebehandling, men også dannelsen af nye mesofasemikrokugler. Det er derfor nød-
15 vendigt at udføre den sekundære varmebehandling ved en temperatur, hvorved matrixbegen ikke giver anledning til en yderligere termisk krakning og termisk kondensationsreaktion. Eftersom den øvre temperaturgrænse varierer efter begens kemiske egenskaber og forhistorie,
20 er bestemmelsen af den øvre temperaturgrænse på basis af temperaturen for den primære varmebehandling, som beskrevet ovenfor hensigtsmæssig.

Temperaturen for den sekundære varmebehandling er fortrinsvis lig med eller større end 350°C og lig
25 med eller mindre end den temperatur, der er 40°C mindre end temperaturen for den primære varmebehandling. Varigheden af den sekundære varmebehandling er ikke særlig kritisk. Den nedre grænse er et tidsrum, hvorved der kan opnås en ensartet MC-partikelstørrelse, mens
30 den øvre grænse er et tidsrum, hvorved der ikke dannes for meget ny mesofase. På basis af faktiske resultater kan den nedre grænse imidlertid være af en sådan størrelsesorden, at afkøling påbegyndes umiddelbart efter, at temperaturen for den sekundære varmebehand-
35 ling er blevet nået. Idet den øvre grænse blandt andre faktorer også afhænger af temperaturen for den sekundæ-

re varmebehandling, kan den være af størrelsesordenen 120 minutter. Imidlertid er tidsrummet for den sekundære varmebehandling fortrinsvis så kort som muligt, når blot adskillelse af den uopløselige mesofase ved ensartet udfældning kan opnås. Temperaturstigningshastigheden til temperaturen for den sekundære varmebehandling er ej heller særlig kritisk, men en praktisk hastighed ligger i størrelsesordenen 1 til 20 °C/min.

Efter den sekundære varmebehandling afkøles
10 begen med en afkølingshastighed, der er lig med eller mindre end 200 °C/time. Det har vist sig, at såfremt afkølingshastigheden overstiger 200 °C/time er partikelstørrelsen af de MC'er, der opnås, meget lille. Endog når der anvendes en afkølingshastighed, der er
15 lig med eller mindre end 200 °C/time påvirkes MC'ernes partikelstørrelse af den anvendte afkølingshastighed. Nærmere bestemt resulterer en høj afkølingshastighed i en lille MC-partikelstørrelse, mens en lav afkølingshastighed resulterer i en stor MC-partikelstørrelse. Årsagen hertil er, at krystalvæksthastigheden har en virkning på partikelstørrelsen. Følgelig er det nødvendigt af vælge afkølingshastigheden i overensstemmelse med MC'ernes anvendelsesformål. Ved
20 således at vælge afkølingshastigheden er det muligt at regulere MC-partikelstørrelsen til en vilkårlig ønsket størrelse indenfor et område fra 1 til 30 µm.

Ved udførelse af fremgangsmåden ifølge opfindelsen er det nødvendigt at udføre den sekundære varmebehandling og det efterfølgende afkølingstrin i det
30 væsentlige uden omrøring. Til den primære varmebehandling kan man f.eks. anvendes det kontinuerlige begfremstillingsapparat af flerbeholdertypen, der er beskrevet i beskrivelsen til USA-patent nr. 4.080.283.

Den mesofase, der er udfældet og sammensmeltet
35 eller ophobet ved det sekundære varmebehandlingstrin, som beskrevet ovenfor, adskilles derefter, f.eks. ved

dekantering eller aftapning fra karrets bund, fra den beg, hvori mesofasemikrokuglerne med ensartet partikelstørrelse er opløst eller dispergeret, på et vilkårligt tidspunkt, hvor begen stadig er i dens flydende form ved en temperatur på f.eks. ca. 200°C. Det således adskilte og fjernede mesofasemateriale kan selvfølgelig anvendes som udgangsmateriale til carbonmaterialer og lignende.

På den anden side blandes den beg, der efter den sekundære varmebehandling indeholder mesofasemikrokugler med ensartet partikelstørrelse, under opvarmning efter behov med et aromatisk opløsningsmiddel, f.eks. quinolin, pyridin, anthracenolie eller lignende, hvorved begmatrixen selektivt opløses til opnåelse af mesofasemikrokugler i form af MC'er ved faststof-væske-separation. I nærværende beskrivelse anføres disse behandlingstrin som "solventekstraktion".

Skønt faststof-væske-separationen naturligvis også kan udføres ved hjælp af en sigte eller et filter foretrakkes anvendelsen af væskecykloner til industriel produktion. Opnåelsen af MC'erne fra begen på denne måde udføres fortrinsvis ved en fremgangsmåde, der omfatter anvendelse af de flertrinsvæskecykloner, der er beskrevet i USA-patentskrift nr. 4363690. Væskecyklonerne anvendes til vask af MC'erne og bibringelsen af en yderligere klassificeringsvirkning, og anvendelse af et ikke-aromatisk opløsningsmiddel deri er også mulig.

Ifølge opfindelsen, som beskrevet ovenfor, opnås MC'er med en meget snæver partikelstørrelsesfordeling ved engangsafkøling af en beg, der indeholder mesofasemikrokugler, der er opnået ved varmebehandling af en tung olie og genopvarmning af begen og derpå yderligere afkøling af begen med en valgt afkølingshastighed, hvor der endvidere opnås en partikelstørrelse, der fastlægges ved regulering af afkølingshastigheden.

Disse MC'er er velegnede til brug som chromatografi-pakkematerialer, katalysatorbærere osv.

Opfindelsen vil blive nærmere forklaret i de nedenstående udførelses- og sammenligningseksempler.

5

Sammenligningseksempel 1

Dekanteringsolie (kogepunktsområde 440°C og højere) opnået ved termisk krakning af råolie varmebehandles ved 450°C i 75 minutter og afkøledes derefter med en hastighed på ca. $400^{\circ}\text{C}/\text{time}$ for derved at fremstille en primært varmebehandlet beg. Et mikrofotografi (forstørrelse på 172X) optaget gennem et polariserende mikroskop af denne beg er vist i fig. 2(a). I denne figur kan ses, at der er dannet et stort antal mesofasemikrokugler i begen, men at disse mikrokugler har forskellig partikelstørrelse.

Den ovenfor beskrevne beg blandedes med en 15 gange så stor mængde quinolin, og begmatrixen opløstes derved til faseadskillelse af MC'erne med et udbytte på 5,4 vægt% (på basis af begen). Et mikrofotografi (forstørrelse på 1000X) optaget gennem et scanningselektronmikroskop af de således opnåede MC'er er vist i fig. 2(b), og deres partikelstørrelsesfordeling er angivet i fig. 3. Som det fremgår af fig. 3 er MC'ernes partikelstørrelse fordelt over et bredt område fra ca. 1 μm til 20 μm eller mere.

Eksempel 1

Den primære varmebehandlede beg, der opnåedes i sammenligningseksempel 1 genopvarmedes til 380°C med en temperaturstigningshastighed på $3^{\circ}\text{C}/\text{minut}$ og afkøledes derefter umiddelbart med en afkølingshastighed på $60^{\circ}\text{C}/\text{time}$. Da temperaturen nåede 200°C , fjernedes den supernatante del af begen ved dekantering. Herved blev der efterladt et sediment som rest på bunden. Den supernatante del af begen afkøledes yderligere med

en hastighed på 60°C/time .

Et mikrofotografi (forstørrelse på 172X) optaget gennem et polariserende mikroskop af den således opnåede beg er vist i fig. 4(a). Denne beg udsattes for quinolinekstraktion svarende til den i sammenlignings-
5 eksempel 1 for derved at opnå MC'er. Et mikrofotografi optaget gennem et scannings elektromikroskop af de således opnåede MC'er er vist i fig. 4(b), og deres partikelstørrelsesfordeling er angivet i fig. 5.

10 Af figurerne 4(b) og 5 ses, at partikelstørrelsesfordelingen for de således opnåede MC'er ligger i et område fra ca. 10 til 14 μm , og at der ved fremgangsmåden ifølge opfindelsen opnåedes MC'er med bemærkelsesværdigt forbedret partikelstørrelsesfordeling.

15 Udbytte af de således opnåede MC'er på basis af begen var 3,6 vægt%. Det vil i sammenligning med sammenligningseksempel 1, hvor der ved den primære varmebehandling dannedes MC'er af 5,4 vægt%, sige at 66,7% deraf ved den sekundære varmebehandling omdannes
20 til MC'er med ensartet partikelstørrelse, mens de resterende 33,3% udfældedes uden at blive genopløst. Som det fremgår af fig. 3 svarende til sammenlignings-eksempel 1, er den del af de MC'er, der dannedes ved sammenligningseksempel 1 med partikelstørrelser fra 10
25 til 14 μm , i modsætning hertil kun 11%.

Den sekundære varmebehandling har således ikke blot den virkning, at der udelukkende udvælges en del af et særligt partikelstørrelsesområde blandt de MC'er, der dannes ved den primære varmebehandling, men også
30 den forbløffende virkning at genskabe en ønsket partikelstørrelsesfordeling.

Sammenligningseksempel 2

Det samme udgangsmateriale som i sammenligningseksempel 1 behandledes under de samme betingelser
35 som ved en sekundære varmebehandling i eksempel 1,

dvs. opvarmning til 380°C med en temperaturstignings-
hastighed på $3^{\circ}\text{C}/\text{minut}$ og afkøling umiddelbart derefter
til stuetemperatur med en afkølingshastighed på
60 $^{\circ}\text{C}/\text{time}$ for derved at opnå en primært varmebehandlet
5 beg. Fig. 6 viser et mikrofotografi optaget gennem et
polariserende mikroskop af denne beg, heraf er det
klart, at der ikke dannedes nogle mesofasemikrokugler.

Det er derfor klart, at de MC'er med ensartet
partikelstørrelse, der opnåedes i eksempel 1, ikke dan-
10 nedes ved den sekundære varmebehandling, men be-
stod af MC'er, der fremkom ud fra de mesofasemikro-
kugler, der dannedes ved den primære varmebehandling
og som blev gjort ensartede ved at blive genopløst i
begmatrixen ved den sekundære varmebehandling og der-
15 efter genudfældet.

Sammenligningseksempel 3

Det samme udgangsmateriale som i sammenlig-
ningseksempel 1 varmebehandlede ved 460°C i 75 minut-
20 ter og afkøledes derefter gradvist med en afkølings-
hastighed på $60^{\circ}\text{C}/\text{time}$ til stuetemperatur for derved
at fremstille en primært varmebehandlet beg.

Fig. 7 viser et mikrofotografi optaget gennem
et polariserende mikroskop af denne beg. De mesofase-
25 mikrokugler, der dannedes i dette tilfælde, inkluderede
ingen meget små mikrokugler i modsætning til dem i sam-
menligningseksempel 1, men havde ingen ensartet par-
tikelstørrelse. Det er således klart, at udelukkende
langsom afkøling ved afkølingstrinnet er utilstrække-
30 lig til at gøre mesofasemikrokuglernes partikelstørrel-
se ensartet, og at udførelse af en sekundær varmebe-
handling er nødvendig.

P A T E N T K R A V

35 1. Fremgangsmåde til fremstilling af mesocarbon-
mikroperler med snæver partikelstørrelsesfordeling,
hvor der fremstilles en primær, varmebehandlet beg

- indeholdende mesofasemikrokugler ved at udsætte en tung olie for en primær varmebehandling og afkøle den således fremstillede beg en gang til en temperatur, der er lig med eller lavere end dens blødgøringspunkt,
- 5 k e n d e t e g n e t ved,
- a) at begen derefter udsættes for en sekundær varmebehandling ved en temperatur, der er lig med eller højere end 300°C og som endvidere er lig med eller mindre end den temperatur, der ligger 20°C under temperaturen for
- 10 den primære varmebehandling,
- b) at begen afkøles med en afkølingshastighed, der er lig med eller mindre end 200°C/time ,
- c) at der fra den således varmebehandlede beg, mens den er i væskeform, udskilles uopløste mesofasemikrokugler, udfældede under den sekundære varmebehandling
- 15 og,
- d) at der derefter ved solventekstraktion opnås mesofasemikrokugler med i det væsentlige ensartet partikelstørrelse, og dannet i den resterende beg.
- 20 2. Fremgangsmåde ifølge krav 1, k e n d e t e g n e t ved, at temperaturen for den sekundære varmebehandling af begen er lig med eller højere end 350°C og endvidere lig med eller mindre end den temperatur, der ligger 40°C under temperaturen for den
- 25 primære varmebehandling.
3. Fremgangsmåde ifølge krav 1 eller 2, k e n d e t e g n e t ved, at den sekundærtvarmebehandlede beg efter separation af den udfældede mesofase fortyndes med et aromatisk opløsningsmiddel, og at der op-
- 30 nås mesofasemikrokugler med i det væsentlige ensartet partikelstørrelse ved faststof-væskeseperation.
4. Fremgangsmåde ifølge krav 3, k e n d e t e g n e t ved, at faststof-væskeseperationen udføres ved hjælp af flertrinsvæskecycloner.

FIG. 1

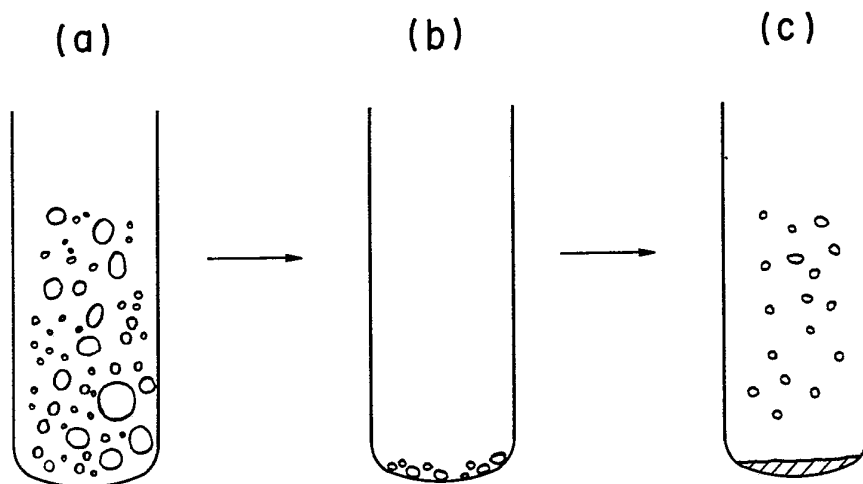


FIG. 3

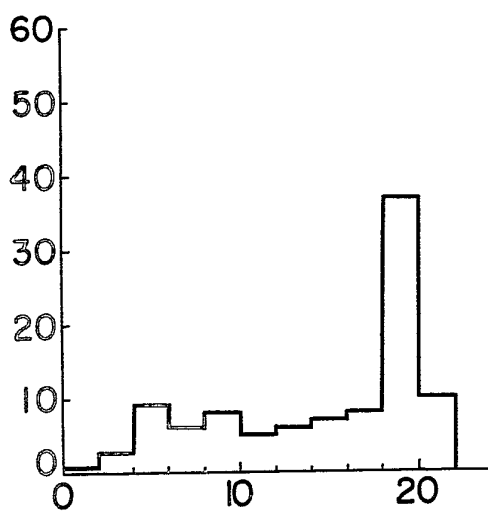
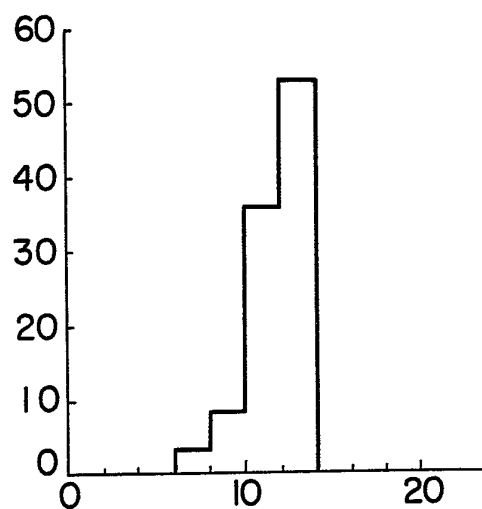
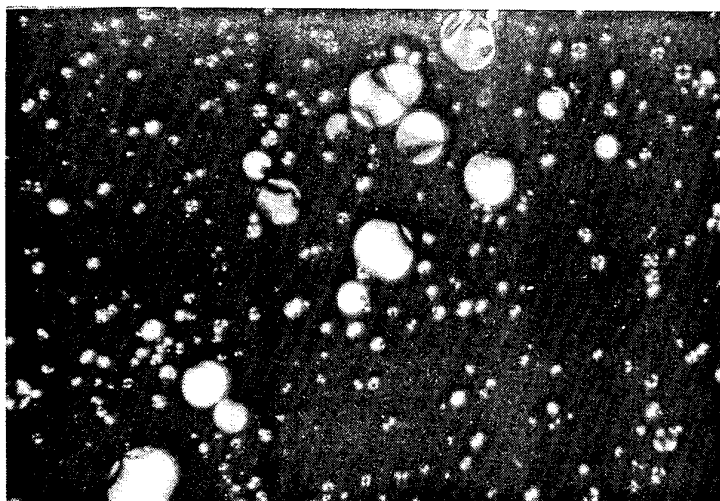


FIG. 5



F I G . 2 (a)



F I G . 2 (b)

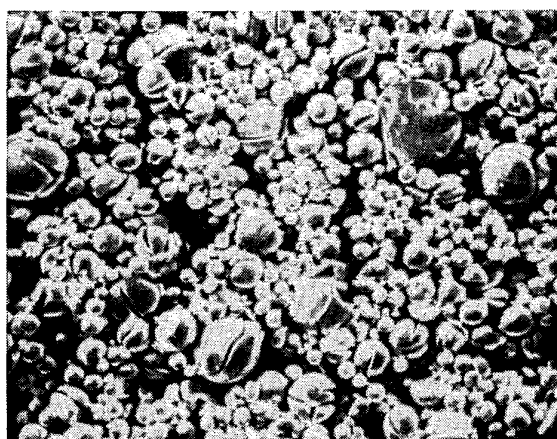


FIG. 4(a)



FIG. 4(b)

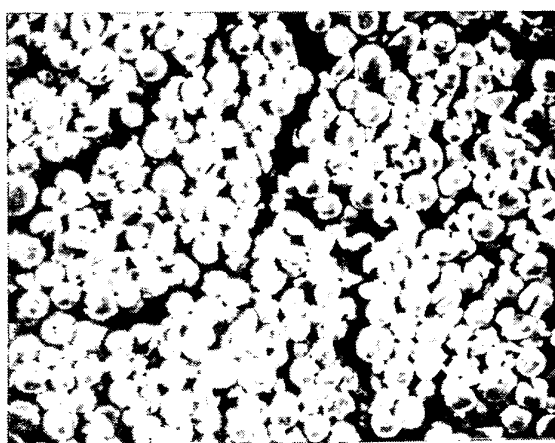


FIG. 6

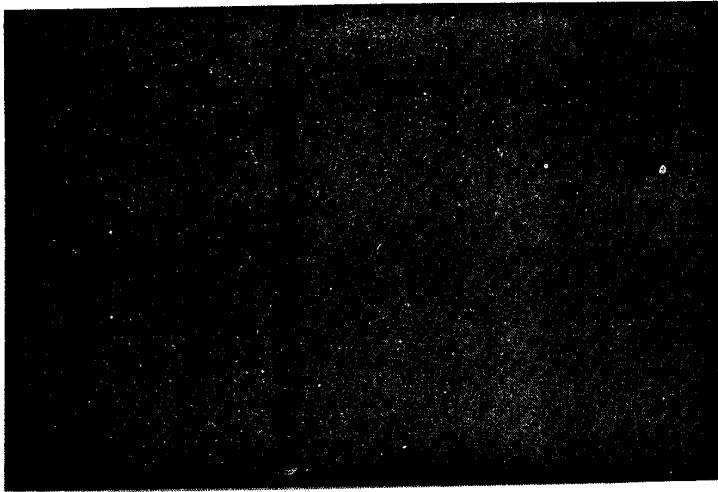


FIG. 7

