公告本

380159

修正 86. 7. 12
本 年 月 日
補充

申請日期	84. 12. 14
案號	84113356
類別	C10C 3/02

（以上各欄由本局填註）

A4
C4 380159

中文說明書修正頁(86年7月)

發明 新型 專利說明書

一、發明 新型 名稱	中文	製備成溶劑化物之各向同性瀝青及由其製得之碳加工品之方法，成溶劑化物之各向同性瀝青及由其製得之瀝青纖維
	英文	PROCESSES FOR PREPARING SOLVATED ISOTROPIC PITCH AND CARBON ARTIFACTS THEREFROM, SOLVATED ISOTROPIC PITCH AND PITCH FIBER PREPARED THEREFROM
二、發明 創作 人	姓名	(1)艾區・羅米尼 Romine, H. Ernest (2)愛德華・南尼 Nanni, Edward J. (3)馬克・卡爾 Carel, Mark W. (4)馬克・邵薩德 Southard, W. Mark
	國籍	均美國
	住、居所	(1)美國俄克拉荷馬州・旁卡城艾吉伍德八〇四號 804 Edgewood, Ponca City, OK 74604, USA (2)美國俄克拉荷馬州旁卡城布魯斯田路二五二一號 2521 Bluestem Road, Ponca City, OK 74604, U.S.A. (3)美國俄克拉河馬州・邦卡城・泰納路三二〇一號 3201 Turner Road, Ponca City, OK 74604, USA (4)美國俄克拉荷馬州旁卡城透納路二二一五號 2215 Turner Road, Ponca City, OK 74604, U.S.A.
三、申請人	姓名（名稱）	美商可諾可公司 Conoco Inc.
	國籍	美國
	住、居所（事務所）	美國俄克拉荷馬州旁卡城南松林街一〇〇〇號 1000 South Pine Street, Ponca City, Oklahoma 74602-1267, U.S.A.
	代表人姓名	艾爾・威爾森 Wilson, L. Duane

裝 訂 線

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

公告本

380159

修正 86. 7. 12
本 年 月 日
補充

申請日期	84. 12. 14
案號	84113356
類別	C10C 3/02

（以上各欄由本局填註）

A4
C4 380159

中文說明書修正頁(86年7月)

發明 新型 專利說明書

一、發明 新型 名稱	中文	製備成溶劑化物之各向同性瀝青及由其製得之碳加工品之方法，成溶劑化物之各向同性瀝青及由其製得之瀝青纖維
	英文	PROCESSES FOR PREPARING SOLVATED ISOTROPIC PITCH AND CARBON ARTIFACTS THEREFROM, SOLVATED ISOTROPIC PITCH AND PITCH FIBER PREPARED THEREFROM
二、發明 創作 人	姓名	(1)艾區・羅米尼 Romine, H. Ernest (2)愛德華・南尼 Nanni, Edward J. (3)馬克・卡爾 Carel, Mark W. (4)馬克・邵薩德 Southard, W. Mark
	國籍	均美國
	住、居所	(1)美國俄克拉荷馬州・旁卡城艾吉伍德八〇四號 804 Edgewood, Ponca City, OK 74604, USA (2)美國俄克拉荷馬州旁卡城布魯斯田路二五二一號 2521 Bluestem Road, Ponca City, OK 74604, U.S.A. (3)美國俄克拉河馬州・邦卡城・泰納路三二〇一號 3201 Turner Road, Ponca City, OK 74604, USA (4)美國俄克拉荷馬州旁卡城透納路二二一五號 2215 Turner Road, Ponca City, OK 74604, U.S.A.
三、申請人	姓名（名稱）	美商可諾可公司 Conoco Inc.
	國籍	美國
	住、居所（事務所）	美國俄克拉荷馬州旁卡城南松林街一〇〇〇號 1000 South Pine Street, Ponca City, Oklahoma 74602-1267, U.S.A.
	代表人姓名	艾爾・威爾森 Wilson, L. Duane

裝 訂 線

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

380159

申請日期	84 年 12 月 14 日
案號	84113356
類別	

A4
C4

（以上各欄由本局填註）

發明 新型 專利說明書

一、發明 新型 名稱	中文	
	英文	
二、發明 創作 人	姓名	⑷ 馬克・邵薩德 Southard, W. Mark
	國籍	⑷ 美國
	住、居所	⑷ 美國俄克拉荷馬州旁卡城透納路二二一五號 2215 Turner Road, Ponca City, OK 74604, U.S.A.
三、申請人	姓名（名稱）	
	國籍	
	住、居所（事務所）	
	代表人姓名	

裝 訂 線

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

（由本局填寫）

承辦人代碼：	A6 B6
大　　類：	
ＩＰＣ分類：	

本案已向：

國（地區）	申請專利，申請日期：	案號：	，□有　□無主張優先權
美國	1994 年 6 月 27 日	08/266,286	☑無主張優先權

有關微生物已寄存於：　　，寄存日期：　　，寄存號碼：

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄）

裝　訂　線

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

修正 86.7.12
補充 本 年 月 日

五、發明說明（　）

本發明亦提供一種從成溶劑化物之各向同性瀝青中製備碳加工物之方法。此方法包括製備成溶劑化物之各向同性瀝青之步驟，另外包括形成碳加工物之步驟。目前最一般化之碳加工物爲碳纖維。製備碳加工物之方法可選擇性地包括溶劑交換步驟，其中用於製備成溶劑化物之各向同性瀝青之溶劑以較適合於製備碳加工物之溶劑取代。

最後，本發明提供具有自身安定化作用或經改良之安定化特徵之碳加工物。本發明之最佳碳加工物爲在溶劑損耗之後，接著形成之加工物，該加工物可加熱至碳化溫度而不會熔化。因此，本發明提供在碳化作用之前，不需化學不溶作用之步驟之碳加工物。

本發明提供在高於成溶劑化物之瀝青之流體溫度安定化之碳加工物，該碳加工物經由加工物之形成，溶劑之移除及加工物之安定化作用之步驟。另外，本發明之安定碳加工物所需時間，當與先前之碳加工物比較時是較低的。另外，出現於本發明之碳加工物之任何中間相傾向於在溶劑損耗之後，接著形成加工物。至於在加工物形成之後形成中間物，藉由與加工物形成作用有關之應力，此中間物非高度延伸的。

圖式簡單說明

圖 1 係爲傳統瀝青與成溶劑化物之瀝青之氧化安定化作用之圖形比較。

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

裝 訂 線

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

五、發明說明（1）

背景與摘要

此申請書係關於發明高熔點各向同性之瀝青能夠轉換成爲成溶劑化物之各向同性之瀝青，藉以降低瀝青之實際熔點。藉由此發明方法所製備之成溶劑化物之瀝青可紡成纖維，而需要些微或不需要安定化處理。

對於紡織傳統之非成溶劑化物之各向同性瀝青之方法是眾所週知的。目前Kureha化學工業公司爲領導先驅，具有每年900噸之能力。另外之製造商包括Ashland Oil公司與Kawasaki Steel公司。

各向同性碳纖維通常使用做爲混凝土結構之補强材料。在此觀點，碳纖維必須比得上鋼及玻璃纖維。因此，需要提供碳纖維僅可能之最低成本。在製造碳纖維之方法中，最慢及成本最高之步驟爲在纖維碳化之前之做爲紡織之纖維之安定化（通常由氧化進行）。安定化步驟是需要以阻止纖維之熔化，在碳化過程期間，其所發生之溫度超過350℃且通常高於1000℃。爲了降低此步驟之時間與成本，從高熔點瀝青中製造纖維是較佳的。然而，在本發明之前，在紡織溫度之上熔化之瀝青是不可使用的。

因此，本發明之目的係提供一種製備碳纖維之方法，該方法不需在安定化之前先氧化。另外，本發明提供一種成溶劑化物之各向同性之瀝青，該瀝青具有流體溫度至少40℃，低於在非成溶劑化物之狀態中之相同瀝青之熔點。另外，本發明提供一種可紡織成爲纖維之成溶劑化物之瀝青，該瀝青在等於或大於紡織溫度之溫度下脫揮發作用

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）
裝
訂
線
經濟部中央標準局員工消費合作社印製

五、發明說明（ 2 ）

與氧化安定化。

定義

在此申請書與專利範圍中所應用之術語如定義如下：

〝瀝青〞在此所使用係指由不同工業製備過程，例如，天然瀝青，石油瀝青與重油，所產生之副產物具有瀝青性質之物質，及在石油脂裂解工業所獲得之副產物及從媒中所獲得高碳成份之瀝青。

〝石油瀝青〞意指從石油蒸餾物或殘液之催化與熱裂解中所獲得之殘餘含碳物質。

〝石油煤焦〞意指從石油瀝青之高溫熱處理所得之固態不溶解殘餘物。

〝各向同性之瀝青〞意指包含在光學上所排列之液態結晶物中，分子不排爲一線之瀝青。

〝非各向同性之瀝青〞或〝中間物瀝青〞意指包含經由互相影響而一起組合以形成光學上排列之液態結晶物之芳香族結構分子之瀝青，該瀝青不是液態就是固態，視溫度而定。

〝中間原〞意指當熔解或熔化而形成中間物瀝青之分子，其包含根據加熱而安排形成液體結晶物之大芳香族分子之主要混合物。

〝假中間原〞意指可能之中間物前導之物質，但該物質經加熱通常不會形成光學經排列之液體結晶物，但經加熱將直接地形成固態煤焦，因此未見到熔解或熔化。

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）
裝
訂
經濟部中央標準局員工消費合作社印製

五、發明說明（3）

對於成溶劑化物之瀝青之〝流體溫度〞係指成溶劑化物之瀝青，從超過其熔點之溫度，以每分鐘1℃之冷卻至黏度爲6000泊（poise）之溫度。若成溶劑化物之瀝青之熔點易於決定，其總是低於流體溫度。〝成溶劑化物之瀝青〞意指包含在瀝青中5至40重量%之間之瀝青，該瀝青具有至少40℃之流體溫度，當不與溶劑關連時，低於該瀝青成份之熔點。

〝纖維〞意指能夠形成爲有用之物件之纖維長度。

〝定向分子結構〞意指在所形成之含碳加工物中，中間物範圍之排列，其排序相對於加工物之軸並提供對加工物之結構性質。

當提到成溶劑化物之〝溶劑含量〞時，係指在溶劑之眞空分離之重量損耗值。在此測定中，無吸入溶劑之樣本或經分離溶劑之樣本正確地稱重之，在眞空烤箱中，於小於5mm壓力，150℃之溫度下，壓碎並加熱1小時。溶劑含量之百分比係重量損失或差異乘上100，除以原始樣本之重量。

〝氧化作用／安定化作用〞係藉由加工物與氧或氧化劑反應，而使得瀝青加工物不可熔化或不可熔解之過程。

〝軟化點與熔點〞係在惰性氣體之下，在熱階段顯微鏡上以約5℃／分鐘加熱樣本所決定之。對於經乾燥之瀝青之軟化點係指瀝青顆粒之角特徵首度磨圓之溫度。而對於經乾燥之瀝青之熔點係指經軟化之瀝青可看到首先流動之溫度。

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）
裝
訂
線
經濟部中央標準局員工消費合作社印製

五、發明說明（ 4 ）

本發明之簡要說明

此發明提供一種成溶劑化物之各向同性之瀝青及一種製備成溶劑化物之各向同性瀝青之方法。另外，此發明提供具有唯一安定化性質及高熔化溫度之低成本碳加工物。另外，本發明提供所出現之任何中間物範圍沿著纖維之軸不是高度地延伸或延長之碳纖維。

一種典型之製備成溶劑化物之各向同性之瀝青之方法，該瀝青包含一起混合成份而形成可溶解之溶劑相及不可溶之瀝青相。較佳之混合過程是發生於足夠維持所有相在液體狀態之溫度，之後該系統允許沈澱。在系統沈澱期間，發生相分離。在相分離之後，在不致於破壞成溶劑化物之各向同性瀝青之條件下，藉由移除液體溶劑相而回收成溶劑化物之各向同性瀝青。

本發明之成溶劑化物之各向同性瀝青具有小於４０體積％之光學各向異性（中間物）。然而，應瞭解乾燥瀝青而移除溶劑可產生額外之中間物。另外，本發明之成溶劑化物之各向同性瀝青具有至少４０℃之流體溫度，低於未具有溶劑之相同瀝青之熔點。另外，本發明之成溶劑化物之各向同性瀝青具有至少５０重量％甲苯不可溶物。最後，視進料瀝青之組成物而定，本發明之成溶劑化物之各向同性瀝青不是１）在溶劑移除之後即自動地自身具有安定作用，就是２）在相當短之時間週期中，在高於其流體溫度之溫度下安定化。

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）
裝
訂
經濟部中央標準局員工消費合作社印製

修正 86.7.12
補充 本 年 月 日

五、發明說明（　）

本發明亦提供一種從成溶劑化物之各向同性瀝青中製備碳加工物之方法。此方法包括製備成溶劑化物之各向同性瀝青之步驟，另外包括形成碳加工物之步驟。目前最一般化之碳加工物爲碳纖維。製備碳加工物之方法可選擇性地包括溶劑交換步驟，其中用於製備成溶劑化物之各向同性瀝青之溶劑以較適合於製備碳加工物之溶劑取代。

最後，本發明提供具有自身安定化作用或經改良之安定化特徵之碳加工物。本發明之最佳碳加工物爲在溶劑損耗之後，接著形成之加工物，該加工物可加熱至碳化溫度而不會熔化。因此，本發明提供在碳化作用之前，不需化學不溶作用之步驟之碳加工物。

本發明提供在高於成溶劑化物之瀝青之流體溫度安定化之碳加工物，該碳加工物經由加工物之形成，溶劑之移除及加工物之安定化作用之步驟。另外，本發明之安定碳加工物所需時間，當與先前之碳加工物比較時是較低的。另外，出現於本發明之碳加工物之任何中間相傾向於在溶劑損耗之後，接著形成加工物。至於在加工物形成之後形成中間物，藉由與加工物形成作用有關之應力，此中間物非高度延伸的。

圖式簡單說明

圖 1 係爲傳統瀝青與成溶劑化物之瀝青之氧化安定化作用之圖形比較。

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

裝 訂 線

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

五、發明說明（ 6 ）

本發明之詳細發明

Ｉ．成溶劑化物之各向同性瀝青之製備

成溶劑化物之各向同性瀝青之製備一開始選擇適合之進料瀝青。適合使用於本發明之瀝青將具有約８８重量％至９６重量％之碳，至多約１２重量％之氫及不超過６重量％之硫，氧，氮或其他成份之組成。較佳爲該瀝青分子之主要部份爲芳香族。另外，該瀝青應具有低濃度之流動不可溶物。而較佳爲該瀝青具有小於２０％之流動不可溶物。若需要時，在成溶劑化之前或之後過濾該瀝青而達到適當不可溶物之等級。該瀝青與有機助溶劑，如：甲苯，氯仿或四氫呋喃，溶化，接著進行溶化之不可溶物質之物性分離。這些流動之不可溶物典型上包含如灰與無機化合物之瀝青雜質。在一些例子中，非常高熔化之有機化合物亦可做爲流動之不可溶物而移除之。通常，具有小於３０重量％喹啉不可溶物（ＱＩ）之瀝青將是適當的；然而，較佳之瀝青應具有介於０重量％與１０重量％之間之ＱＩ。典型上，這些瀝青具有約從１００℃至約３００℃之熔點範圍。

對於適當瀝青之另一參數爲在溶劑中，例如：甲苯，之不溶解程度。一般，該瀝青必須包含至少５重量％之甲苯不可溶物而產生成溶劑化物之各向同性之瀝青產物。較佳爲該瀝青將包含至少２０重量％之甲苯不可溶物。與流動之不溶解物比較，甲苯不可溶物通常爲需要較濃溶劑而變成可溶解化之有機化合物。符合上述要求之瀝青包括合

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）
裝
訂

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

五、發明說明（7）

成物質，媒，石油與乙烯焦油瀝青。商業上可購買到之瀝青包括Ashland A240瀝青，經加熱處理之Ashland A240與Ashland Aerocarb瀝青。

適當之成溶劑化溶劑之選擇在本發明中是相當重要的。典型上適合之溶劑具有溶解度參數範圍爲8.0至11.0。術語〝溶解度參數〞定義爲

$$\rho = \left(\frac{H_v - RT}{V}\right)^{1/2}$$

其中 H_v ＝蒸發熱

R ＝莫耳氣體常數

T ＝溫度（°K）

V ＝莫耳體積

對於溶解度參數之討論請參考非電解質之溶解度（Solubility of Non-Electrolytes），1948，J. Hildebrand與R. Scott，在此合併做爲參考。在本發明中所發現之有用溶劑包括：苯，甲苯，二甲苯，四氫萘。另外，其他取代性芳香族溶劑，如，雜芳香族（例如：喹啉與吡啶）及1至3環芳香族化合物及其部份氫化或烷基化之衍生物可使用於本發明。取代之芳香族之芳香族調和物與鏈烷烴溶劑，如：庚烷，在本發明中亦適合。一般，合適之溶劑將產生四分之一至二倍重瀝青不可溶解物量（由甲苯所製備之重瀝青不可溶解物量）。對於本發明之目的，溶解度係由結合一克之瀝青與25mℓ之溶劑在室溫中所量測出

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）
裝
訂
經濟部中央標準局員工消費合作社印製

五、發明說明（ 8 ）

。

本發明之方法，結合如上所述之瀝青與溶劑，提供一種成溶劑化物之各向同性瀝青。根據本發明之方法，該各向同性之瀝青在約1小時之週期中，於足夠轉換在混合物中之所有相轉變爲液態之溫度下及在足夠阻止沸騰之壓力下與溶劑混合之。在混合之後，沈澱與冷卻該瀝青／溶劑系統。在此步驟期間，發生相分離，產生液態溶劑相與成溶劑化物之瀝青相。依設備而定，沈澱之完成時間約5至30分鐘。若需要，可使用如離心之機械方法而加速相分離。在相分離之後，所回收之成溶劑化物之瀝青不是液態就是可冷卻該混合物之液體，而所回收之瀝青係爲沈澱固體。在任何一個例子中，較方便之回收方法將是適合的，例如：輕輕倒出該液態相或過濾而移除固態成溶劑化物之瀝青。在液體狀態中可連續地回收成溶劑化物之瀝青與溶劑相。若需要可過濾在液體狀態中之經回收成溶劑化物之瀝青而移除污染物。

藉由形成各向同性進料瀝青與溶劑之相同結合（在較低之溫度下，使得溶劑相爲液體而成溶劑化物之瀝青相爲固體）而獲得成溶劑化物之瀝青。當使用此方法時，該固體成溶劑化物之瀝青可由傳統之方法，例如過濾，而回收之。

成溶劑化物之瀝青之非揮發部份之性質可在約150℃之溫度下，藉由乾燥該成溶劑化物之瀝青約60分鐘而移除溶劑而量測之。在乾燥瀝青之後，藉由在惰性氣壓之

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）
裝
訂
經濟部中央標準局員工消費合作社印製

五、發明說明（9）

下，以約5℃／分鐘速率之熱階段顯微鏡上加熱而決定軟化點與熔點。在溶劑移除之後，正常之下，本發明之瀝青將具有至少280℃之軟化點。在大於500℃之溫度下，較硬之經乾燥之瀝青將軟化；然而，當在惰性氣體中，以5℃／分鐘加熱時，這些瀝青將不會熔化。這些瀝青被認爲是自身安定化，因此其在連續加熱時，將直接碳化至碳加工品上。

II．成溶劑化物之各向同性瀝青

本發明之成溶劑化物之各向同性瀝青提供幾種超過非成溶劑化物之各向同性瀝青之重要利益。一般，成溶劑化物之瀝青將包含從約5重量%至約40重量%之溶劑。另外，該成溶劑化物之瀝青具有至少50重量%之甲苯不可溶物且可能由至多40體積%之光學各向異性所組成。一旦從該瀝青中移除溶劑，各向異性之成份可增加之。本發明之成溶劑化物之各向同性之瀝青具有至少40℃，在一些例子中超過100℃之流體溫度，低於在非成溶劑化物之狀態中意即，乾燥瀝青，相同瀝青之熔點。

III．製備碳加工物之方法

本發明另外提供一種從成溶劑化物之各向同性之瀝青中製造碳加工物之方法。特別是本發明提供一種從成溶劑化物之各向同性之瀝青中製造碳纖維之方法。從成溶劑化物之各向同性之瀝青中製造碳加工物之方法係從成溶劑化

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）
裝
訂
經濟部中央標準局員工消費合作社印製

五、發明說明（ 10）

物之各向同性之瀝青開始。

視所形成之加工物及用以媒合瀝青所使用之溶劑而定，該製造方法可要求以適合於本製備方法之溶劑代替媒合瀝青。此步驟爲已知之溶劑交換，可由幾種方法達成。一種方法：要求乾燥成溶劑化物之瀝青而趕走溶劑，接著以合適之溶劑再媒合該瀝青。而另一種方法提供添加一種具有高於起始媒合瀝青之沸點之溶劑至成溶劑化物之瀝青中。然後，加熱此混合物至沸騰而移除較低沸點之溶劑（從包含較高沸點溶劑之成溶劑化物之瀝青中離開）。不管何種方法，典型之製造溶劑將具有約 8 至約 1 2 且可能更高之溶解度參數。該製造溶劑（非消耗性地）可包括下列溶劑之一或多種溶劑：甲苯，苯，二甲苯，四氫萘，四氫呋喃，氯仿，庚烷，吡啶，喹噁，經鹵化之苯，氯氟苯，及 2 至 4 環芳香族之溶劑，及其部份烷圖化與氫化之衍生物。

一旦該成溶劑化物之瀝青包含一種適合該製造方法之溶劑，其可藉由在此技藝中已知之方法形成爲碳加工物。目前，最普通之碳加工物爲碳纖維。

在從成溶劑化物之瀝青中紡織碳纖維之方法中，部份溶劑將從產品纖維中遺失。在拉絲之後，任何剩餘之溶劑藉由乾燥纖維而立即移除。溶劑之損失產生具有至少 2 8 0 ℃軟化點之碳纖維。另外，所得之纖維將具有高於纖維之拉絲溫度之熔點。最終，視起始化之進料瀝青而定，所得之纖維在碳化之前將不需要額外之處理。

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）
裝
訂
經濟部中央標準局員工消費合作社印製

五、發明說明（11）

具有大於350℃開始溫度之軟化溫度之經乾燥纖維不需在碳化之前先安定化作用。而較佳之纖維爲具有高於500℃之軟化點。在溫度些微低於纖維之軟化點時，加熱纖維而達成碳化作用。至於纖維發展之碳化作用，纖維之軟化溫度上昇，允許碳化反應之溫度相對增加。然而，在碳化反應期間，該纖維從來不會加熱超過其軟化點。對於具有高於500℃軟化點之纖維可在每分鐘20℃之上昇或更快但不會軟化該纖維之速率下加熱。一般，在600℃加熱，碳化作用完成之。然而，可在甚至較高之溫度下處理該纖維。

對於具有約280℃至500℃之間之軟化點之瀝青，在碳化之前較佳進行氧化安定化作用。另外，在某些環境之下，可能需要氧化安定化具有高於500℃軟化點之瀝青。

本發明之一利益爲在相對高溫與低氧濃度中，能夠快速地氧化安定瀝青且／或由該瀝青所製成之碳加工物。更明確而言，安定化作用可在高於加工物形成溫度之溫度下及包含低於5％氧之大氣中完成之。本發明超過先前氧化安定化作用之方法之利益由例2與圖1論證之。圖1比較一種傳統瀝青與成溶劑化物之瀝青之氧化安定化作用。如圖1之論證，在氧化安定化作用之前，成溶劑化物之瀝青不需冷卻，且安定化作用發生於較高溫度較短週期時間。因此，本發明提供一種重要之安全利益，其安全性超過在氧化安定化作用時藉由排除燃燒危險性之先前技藝。

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）
裝
訂
經濟部中央標準局員工消費合作社印製

五、發明說明（ 12）

IV．從成溶劑化物之瀝青中形成碳纖維

本發明之以瀝青拉絲之纖維總是在成溶劑化物之瀝青拉絲溫度之上熔化。在溶劑移除之後，本發明之纖維典型上爲不可熔的。結果，本發明之纖維時常在碳化之前不需化學安定化。然而在一些情況是需要安定化作用：在僅包含約2％至5％氧之大氣下，在足夠短之週期時間進行時是需要安定化作用。

一旦經拉絲之纖維碳化，本發明之碳纖維可從連續各向同性至連續各向異性變化之。然而，出現在這些纖維中任何各向異性區域之主要部份不具有中間物瀝青碳纖維之高度延長範圍特徵。這些纖維具有相當於傳統各向同性瀝青纖維之張力强度。爲了達成包含各向異性區域之纖維程度，與完全各向同性之纖維比較，其具有經改良之熱與電特性。

下列例子用以說明本發明。除非特別指定，否則所有之份與百分比均爲重量。申請者不希望出現之例子而限制該理論，本發明之眞實範圍係以所附之申請專利範圍爲原則。

例 1

在經攪拌之壓力鍋中，以每8ｃｃ溶劑1ｇ瀝青之比例，混合Ａ２４０均質瀝青樣本（８重量％甲苯不可溶物；商業上可從Ashland Chemical公司，Columbus, Ohio購

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）
裝
訂
經濟部中央標準局員工消費合作社印製

五、發明說明（ 13）

得）與甲苯。在壓力鍋中灌入氮，短暫地排放並密封。在80分鐘之期間，加熱該混合物直至達到233℃之溫度。該混合物保持在233℃10分鐘並攪拌之。該混合物再保持在233℃15分鐘但不需攪拌，然後冷卻之。在加熱期間，在密閉之壓力鍋中所產生之最大壓力爲175 psig。

從壓力鍋之底部回收固體瀝青，經計算該瀝青之產出率爲6.4%。由光學顯微鏡分析所述之瀝青，發現在小球體之形式中包含5%中間物。

在眞空之下，藉由在360℃加熱30分鐘乾燥固體瀝青樣本。此步驟從該瀝青中移除28.2%之揮發物。在顯微鏡熱階段於氮氣之下，以每分鐘增加5℃之加熱速率加熱至650℃，該經乾燥之瀝青不會軟化或熔化。

例 2

以1g瀝青對8mℓ甲苯之比例，結合Aerocarb 80（30重量%甲苯不可溶物）與甲苯而製備成溶劑化物之瀝青。在230℃攪拌該混合物1小時，允許沈澱15分鐘，然後冷卻之。從容器底部回收濃密固體之成溶劑化物之瀝青層，產出率爲54%。該成溶劑化物之瀝青充分地均質，僅具有5至10體積%非等方向性之細緻球體型式與部份較大球體。

在眞空之下，在150℃乾燥成溶劑化物之瀝青樣1小時以移除溶劑。接著之乾燥，該瀝青損失22.1重量

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）
裝
訂
經濟部中央標準局員工消費合作社印製

五、發明說明（14）

%。在眞空之下，進一步加熱瀝青至360℃而移除另外之4.9%揮發物。此額外損耗似乎是因任何剩餘溶劑之移除及一些輕油之損耗。分析此樣本顯示總共52體積%之不等向性。此論証成溶劑化物之各向同性瀝青因溶劑之損失而產生額外之不等向性。

成溶劑化物之均質瀝青之流體溫度在小壓力鍋中藉由量測攪拌阻抗而決定之。甲苯成溶劑化物之瀝青之部份加熱至超過其流體溫度之溫度，在此例爲235℃，然後緩慢地以約每分鐘1℃冷卻之。使用此方法，該甲苯成溶劑化物之瀝青在191℃達到6000poise之黏度。因此，成溶劑化物之瀝青之流體溫度爲42℃，低於Aerocarb進料瀝青之熔點。

後來，經由使用熱階段顯微鏡而決定在移除溶劑之後，成溶劑化物之瀝青之溶劑與軟化點。如先前所定義，軟化發生於瀝青顆粒之尖銳角首先變圓之時機。當看到經軟化之瀝青之首次可觀察到之流動時，即發生熔化。使用這些程序與定義，經乾燥之成溶劑化物之瀝青在323℃軟化，在328℃熔化。經乾燥之成溶劑化物之瀝青之熔點爲95℃，較高於Aerocarb 80進料瀝青。值得注目地，在經乾燥之成溶劑化物之瀝青與成溶劑化物之瀝青之流體溫度之間之熔點差異，在此實驗中至少爲137℃。

爲了論証經乾燥之非成溶劑化物之瀝青之改善安定化特徵，氧化經乾燥之成溶劑化物之瀝青樣本與Aerocarb 80。二種瀝青樣本碾碎成10至200微米之顆粒，並

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）
裝
訂
經濟部中央標準局員工消費合作社印製

五、發明說明（ 15）

在近乎２０℃之溫度（低於其軟化點）氧化３０分鐘。氧化氣體爲在氮中２％氧。因此，Aerocarb ８０進料瀝青在２０５℃氧化，而經乾燥之成溶劑化物之瀝青在３００℃氧化。接著氧化，在氮之下，以每分鐘增高５℃之方式加熱而決定每一種瀝青之軟化點與熔點。經安定化之Aerocarb 在２５０℃軟化，在２５４℃熔化，意即在未安定化之瀝青上有２２℃之改善。成對比的是，經安定化之成溶劑化物之瀝青並未熔化，且僅有２０％之樣本顯示在加熱至６５０℃時，軟化之任何證據。很明顯地，在經安定化之進料瀝青上，經安定化之成溶劑化物之瀝青具有足夠之改良熱特徵。成溶劑化物之瀝青對未成溶劑化物之瀝青之特徵比較，由下列提供之。

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）
裝
訂

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

五、發明說明（ 16）

表 1

	Aerocarb 80	成溶劑化物之瀝青
經乾燥之瀝青特徵[1]，		
軟化點，℃	228	323
熔點，℃	233	328
成溶劑化物之瀝青之流體溫度[2]，℃	---	191
瀝青安定化（2%O_2在N_2中）		
溫度，℃	205	300
時間，分鐘	30	30
經安定化之瀝青特徵[1]，		
軟化點，℃	250	<20%至650
熔點，℃	254	無至650

[1] 在N_2之下，以5℃／分鐘熱階段觀察。

[2] 在冷卻時，其黏度近乎600poise之溫度。

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）
裝
訂

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

五、發明說明（17）

例 3

此例論証從例3之成溶劑化物之各向同性之瀝青紡織成碳纖維之利益在從Aerocarb進料瀝青紡織成纖維之利益之上。在從例3之成溶劑化物之瀝青紡織成纖維之前，成溶劑化物之瀝青以四氫萘再溶解之。再溶解之步驟包含乾燥該成溶劑化物之瀝青以移除甲苯，接著結合該瀝青與四氫萘（以7：2＝瀝青：溶劑之比例）。四氫萘成溶劑化物之瀝青在230℃平衡30分鐘。該經再溶解之瀝青具有161℃之流體溫度。

成溶劑化物之瀝青與Aerocarb進料瀝青熔化並紡織成爲纖維。在187℃，成溶劑化物之瀝青形成50至65微米之纖維。從成溶劑化物之瀝青中做爲紡織而成之纖維包含剩餘之溶劑。這些纖維在氮之下，在二分鐘內加熱至290℃，然後更進一步以5℃／分鐘之速率加熱而決定做成紡織而成之纖維之軟化點與熔點。軟化，藉由尖銳邊緣之磨圓與一些纖維之彎曲所指示，在302℃被觀測出。而熔化，藉由纖維之邊緣之變圓及膨脹及纖維接合點之熔化所指示，於353℃被觀測出。必須注意的是做爲紡織而成之纖維通常較易軟化且較小心地乾燥之纖維較慢熔化。

與本發明成對照，在紡織成爲40至60微米纖維之前需要將Aerocarb進料瀝青加熱至298℃。這些做爲紡織而成之纖維在二分鐘加熱至200℃，然後更進一步以每分鐘5℃之速率加熱之。這些纖維在227℃軟化且在

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

裝 訂

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

五、發明說明（18）

234℃熔化。

此外，二組纖維皆安定化。成溶劑化物之瀝青纖維在270℃，藉由曝露於氮中2%氧，60分鐘而安定化（83℃較高於紡織溫度）。然後將該纖維在氮之下，以每分鐘20℃加熱而昇至650℃。該纖維並不會軟化或熔化。而Aerocarb進料瀝青纖維在195℃曝露於相同含有氧氣之氣體中60分鐘。注意：因這些纖維之熔點，需較低溫之溫度。在氮之下，以每分鐘20℃之上昇溫度，這些纖維在248℃軟化並在258℃熔化。如表2所示，這些結果很明顯地論證出以成溶劑化物之瀝青易於改善安定化及達成降低紡織之溫度。

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）
裝
訂
經濟部中央標準局員工消費合作社印製

五、發明說明（ 19）

表 2

	Aerocarb 80	成溶劑化物之瀝青
熔化紡織溫度，℃	298	187
關於經紡織而成之熔化行爲[1] ——軟化，℃ ——熔化，℃	 227 234	 302 353
纖維安定化（在N_2中2%O_2） 溫度，℃ 時間，分鐘	 195 60	 270 60
經安定化之纖維特徵[2]， 軟化點，℃ 熔點，℃	 248 258	 無至650 無至650

[1] 在N_2之下，以5℃／分鐘之熱階段觀察

[2] 在N_2之下，以20℃／分鐘之熱階段觀察

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）
裝
訂
經濟部中央標準局員工消費合作社印製

五、發明說明（ 20）

另外，從此申請書之考慮或在此所發明之練習，這些發明之體系對於熟知此領域之人士是顯而易見的。本申請書與例子僅做爲模範，而非藉由此限制本發明之眞實領域與精神，而下列申請專利範圍方爲本發明之眞實領域與精神。

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）
裝
訂
經濟部中央標準局員工消費合作社印製

修正 86.7.12
補充 本 年 月 日
A5
B5

四、中文發明摘要（發明之名稱：製備成溶劑化物之各向同性瀝青及由其製得之碳加工品之方法，成溶劑化物之各向同性瀝青及由其製得之瀝青纖維）

本發明係關於提供一種具有流體溫度至少40℃，較低於在非成溶劑化物狀態之相同瀝青之成溶劑化物各向同性瀝青之製備方法。此外，本發明提供可形成爲碳加工物，不需在碳化之前先進氧化安定化過程之成溶劑化物之各向同性瀝青。

英文發明摘要（發明之名稱：PROCESSES FOR PREPARING SOLVATED ISOTROPIC PITCH AND CARBON ARTIFACTS THEREFROM, SOLVATED ISOTROPIC PITCH AND PITCH FIBER PREPARED THEREFROM）

This invention provides a process for preparing a solvated isotropic pitch having a fluid temperature at least 40°C lower than the same pitch in the non-solvated state. Additionally, the present invention provides a solvated isotropic pitch which may be formed into carbon artifacts which do not require oxidative stabilization prior to carbonization.

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄）
裝
訂
線
經濟部中央標準局員工消費合作社印製
本紙張尺度適用中國國家標準（CNS）A4規格（210×297公釐）

修正 86.7.12
補充 本 年 月 日
A5
B5

四、中文發明摘要（發明之名稱：製備成溶劑化物之各向同性瀝青及由其製得之碳加工品之方法，成溶劑化物之各向同性瀝青及由其製得之瀝青纖維）

本發明係關於提供一種具有流體溫度至少40℃，較低於在非成溶劑化物狀態之相同瀝青之成溶劑化物各向同性瀝青之製備方法。此外，本發明提供可形成爲碳加工物，不需在碳化之前先進氧化安定化過程之成溶劑化物之各向同性瀝青。

英文發明摘要（發明之名稱：PROCESSES FOR PREPARING SOLVATED ISOTROPIC PITCH AND CARBON ARTIFACTS THEREFROM, SOLVATED ISOTROPIC PITCH AND PITCH FIBER PREPARED THEREFROM）

This invention provides a process for preparing a solvated isotropic pitch having a fluid temperature at least 40°C lower than the same pitch in the non-solvated state. Additionally, the present invention provides a solvated isotropic pitch which may be formed into carbon artifacts which do not require oxidative stabilization prior to carbonization.

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄）
裝
訂
線
經濟部中央標準局員工消費合作社印製
本紙張尺度適用中國國家標準（CNS）A4規格（210×297公釐）

修正 87.6.10
本 年 月 日
補充

公告本

六、申請專利範圍

1. 一種製備成溶劑化物之各向同性瀝青之方法，該方法包含

a) 混合各向同性瀝青與具有溶解度參數範圍從8.0至11.0之芳香族溶劑60至80分鐘而形成混合物，其中該各向同性瀝青具有小於40體積%光學異向性，和熔點於100℃至300℃間，該瀝青含芳香族分子含量大於50%，及其餘爲88%至96%碳、高達12%氫、小於6%硫、小於6%氧、小於6%氮和瀝青中喹啉不溶物含量爲小於30%，維持足夠之溫度與壓力進行混合，使得出現在該混合物中之所有相均爲液體狀態；、

b) 藉由沈澱或離心而分離所述之混合物成爲液體溶劑相與成溶劑化物之瀝青相；

c) 過濾在液體狀態之成溶劑化物之瀝青而移除任何不可溶之污染物；及

d) 回收該成溶劑化物之瀝青相。

2. 如申請專利範圍第1項之方法，其中該溶劑包含選自由下列成份所組成之群組中之一或多溶劑：甲苯，苯，二甲苯，四氫萘，四氫呋喃，氯仿，庚烷，吡啶，喹噁，鹵素化之苯，氯氟苯，及2至3環芳香族溶劑，及其部份烷基化與氫化衍生物。

3. 如申請專利範圍第1項之方法，其中步驟c)，包含從所述之液體溶劑相中，藉由過濾而分離成溶劑化物之瀝青。

經濟部中央標準局員工消費合作社印製
（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）
裝 訂 線
本紙張尺度適用中國國家標準（CNS）A4規格（210×297公釐）

修正 87.6.10
本 年 月 日
補充

公告本

六、申請專利範圍

1. 一種製備成溶劑化物之各向同性瀝青之方法，該方法包含

a) 混合各向同性瀝青與具有溶解度參數範圍從8.0至11.0之芳香族溶劑60至80分鐘而形成混合物，其中該各向同性瀝青具有小於40體積%光學異向性，和熔點於100℃至300℃間，該瀝青含芳香族分子含量大於50%，及其餘爲88%至96%碳、高達12%氫、小於6%硫、小於6%氧、小於6%氮和瀝青中喹啉不溶物含量爲小於30%，維持足夠之溫度與壓力進行混合，使得出現在該混合物中之所有相均爲液體狀態；、

b) 藉由沈澱或離心而分離所述之混合物成爲液體溶劑相與成溶劑化物之瀝青相；

c) 過濾在液體狀態之成溶劑化物之瀝青而移除任何不可溶之污染物；及

d) 回收該成溶劑化物之瀝青相。

2. 如申請專利範圍第1項之方法，其中該溶劑包含選自由下列成份所組成之群組中之一或多溶劑：甲苯，苯，二甲苯，四氫萘，四氫呋喃，氯仿，庚烷，吡啶，喹噁，鹵素化之苯，氯氟苯，及2至3環芳香族溶劑，及其部份烷基化與氫化衍生物。

3. 如申請專利範圍第1項之方法，其中步驟c)，包含從所述之液體溶劑相中，藉由過濾而分離成溶劑化物之瀝青。

經濟部中央標準局員工消費合作社印製
（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）
裝 訂 線
本紙張尺度適用中國國家標準（CNS）A4規格（210×297公釐）

六、申請專利範圍

4. 一種從成溶劑化物之各向同性瀝青中製備碳加工品之方法，該方法包含：

a) 混合各向同性瀝青與具有溶解度參數範圍從8.0至11.0之芳香族溶劑60至80分鐘而形成混合物，其中該各向同性瀝青具有小於40體積%光學異向性，和熔點於100℃至300℃間，該瀝青含芳香族分子含量大於50%，及其餘爲88%至96%碳、高達12%氫、小於6%硫、小於6%氧、小於6%氮和瀝青中喹啉不溶物含量爲小於30%，維持足夠之溫度與壓力進行混合，使得出現於所述之混合物之所有相均爲液體狀態；

b) 藉由沈澱或離心而分離該混合物成爲液體溶劑相與成溶劑化物之瀝青相；

c) 過濾液體狀態之成溶劑化物之瀝青而移除任何不可溶之污染物，及回收該述之成溶劑化物之瀝青相；

d) 在非成溶劑化物狀態中，低於成溶劑化物之瀝青熔點之溫度下，形成該成溶劑化物之瀝青爲碳加工品；及

e) 在低於該加工品軟化點之溫度下，碳化該加工品。

5. 如申請專利範圍第4項之方法，其中該步驟a)之溶劑包含選自由下列成份所組成之群組中之一或多溶劑：甲苯，苯，二甲苯，四氫萘，四氫呋喃，氯仿，庚烷，吡啶，喹啉，鹵素化之苯，氯氟苯，及2至3環芳香族溶劑及其部份烷基化與氫化衍生物。

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

裝

訂

線

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

本紙張尺度適用中國國家標準（CNS）A4規格（210×297公釐）

六、申請專利範圍

6. 如申請專利範圍第4項之方法，其中步驟c)，所述之成溶劑化物之瀝青經乾燥而移除溶劑，接著以適合於形成碳加工品之溶劑再溶解該瀝青。
7. 如申請專利範圍第6項之方法，其中所述適合形成碳加工品之溶劑包含由下列成份所組成之群組中之一或多溶劑：甲苯，苯，二甲苯，四氫萘，四氫呋喃，氯仿，庚烷，吡啶，喹啉，鹵素化之苯，氯氟苯，及2至4環芳香族溶劑及其部份烷基化與氫化衍生物。
8. 如申請專利範圍第4項之方法，具有額外之安定化步驟：在氧化劑存在下，藉由加熱該加工品。
9. 如申請專利範圍第8項之方法，其中安定化步驟在包含小於5%氧之大氣之下發生。
10. 如申請專利範圍第8項之方法，其中所述之安定化步驟發生於低於加工品形成之溫度。
11. 如申請專利範圍第4項之方法，其中步驟c)包含從所述之液體溶劑相中，藉由過濾而分離該成溶劑化物之瀝青。
12. 如申請專利範圍第4項之方法，具有乾燥該碳加工品之額外步驟。
13. 如申請專利範圍第4項之方法，具有碳化該碳加工品之額外步驟。
14. 如申請專利範圍第4項之方法，其中步驟c)，具有高於步驟a)所述之溶劑沸點之溶劑與該成溶劑化物之瀝青結合，接著加熱該結合物至大於步驟a)溶劑之沸點，以去

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

裝 訂

本紙張尺度適用中國國家標準（CNS）A4規格（210×297公釐）

六、申請專利範圍

除所述之步驟a)溶劑。

15. 如申請專利範圍第4項之方法，其中所述之碳加工品爲碳纖維。

16. 一種成溶劑化物之各向同性瀝青，該成溶劑化物之瀝青部份具有小於40體積%光學異向性包含：

a) 從5重量%至40重量%芳香族溶劑；

b) 至少50重量%甲苯不可溶物；及

c) 該成溶劑化物之瀝青部份具有熔點於100℃至300℃間；和

d) 該瀝青部份含芳香族分子含量大於50%；和

e) 該瀝青部份含88%至96%碳，高達12%氫、小於6%硫、小於6%氧、小於6%氮；和

f) 該瀝青部份中喹啉不溶物含量爲小於30%。

17. 如申請專利範圍第16項之成溶劑化物之各向同性瀝青，其中因溶劑損失而不可溶，該成溶劑化物之瀝青成份具有熔點於100℃至300℃間，芳香族分子含量大於50%，而且該瀝青成份含88%至96%碳，高達12%氫、小於6%硫、小於6%氧、小於6%氮，和該瀝青部份中喹啉不溶物含量爲小於30%。

18. 一種從成溶劑化物之各向同性瀝青所製備之瀝青纖維，該成溶劑化物之各向同性瀝青包含從5重量%至40重量%溶劑，該瀝青纖維因從該纖維移除溶劑而不可溶，該成溶劑化物之瀝青部份具有小於40體積%光學異向性和熔點於100℃至300℃間，及該瀝青含芳香族分子含量大

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

裝 訂 線

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

本紙張尺度適用中國國家標準（CNS）A4規格（210×297公釐）

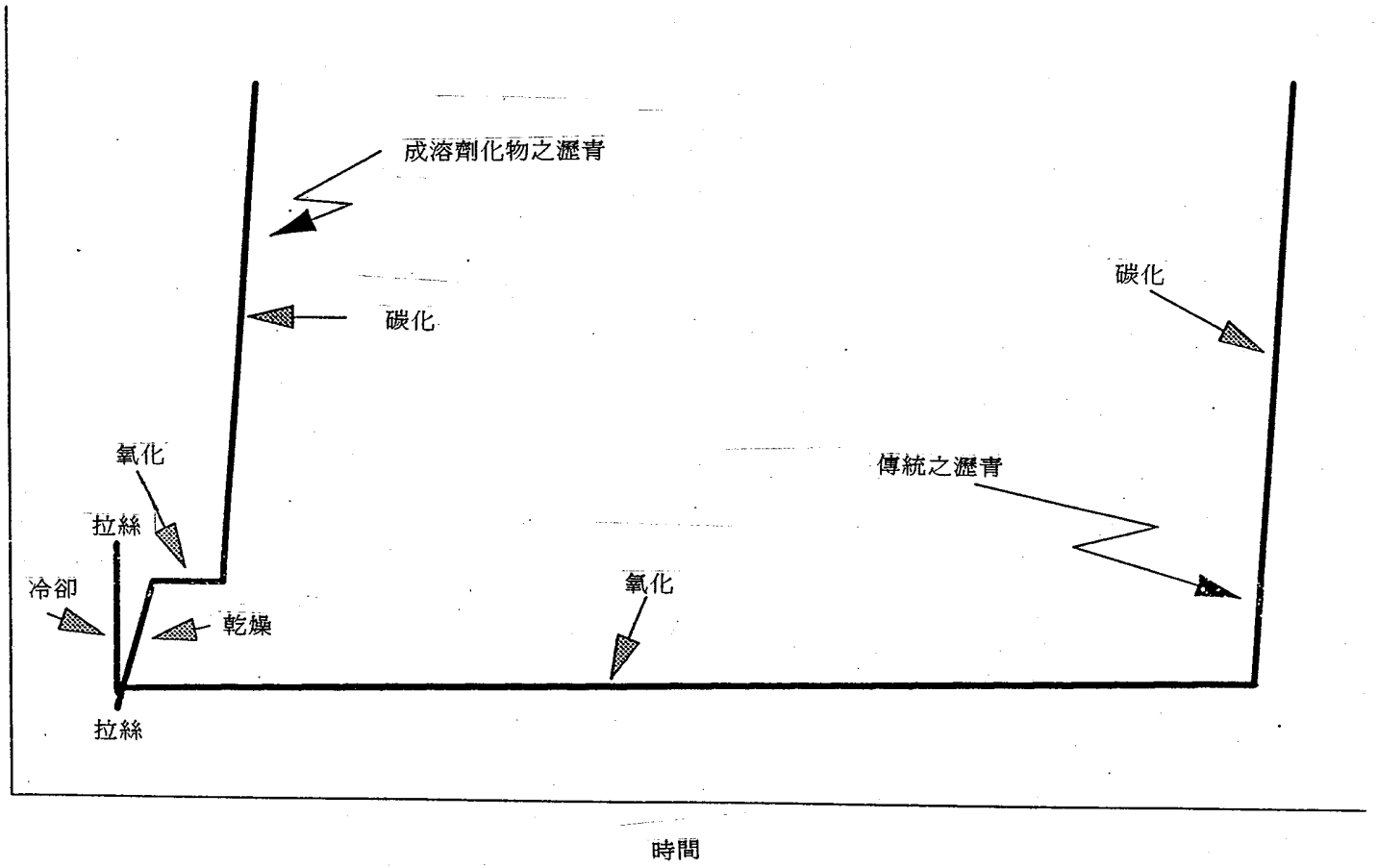
六、申請專利範圍

於50%，並且該瀝青成份含88%至96%碳，高達12%氫、小於6%硫、小於6%氧、小於6%氮，和該瀝青部份中喹啉不溶物含量爲小於30%。

19. 一種從成溶劑化物之各向同性瀝青所製備之瀝青纖維，該成溶劑化物之瀝青部份具有小於40體積%光學異向性，且各向同性瀝青包含從5重量%至40重量%溶劑，該成溶劑化物之瀝青部份具有小於40體積%光學異向性和熔點於100℃至300℃間，及該瀝青含芳香族分子含量大於50%，並且該瀝青成份含88%至96%碳，高達12%氫、小於6%硫、小於6%氧、小於6%氮，和該瀝青部份中喹啉不溶物含量爲小於30%，其中該瀝青纖維在移除溶劑之後，當曝露於含2至5%氧之大氣中，且在高於所述之纖維形成溫度之溫度加熱之，該碳纖維將氧化。

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）
裝
訂
線

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

本紙張尺度適用中國國家標準（CNS）A4規格（210×297公釐）

第 1. 圖　傳統與成溶劑化物之瀝青纖維方法