

28 SEP. 1963

Nº 61.954
Case U.S. Serial Nº 204922



289251

MEMORIA DESCRIPTIVA

que se presenta para unir a la solicitud

d e

P A T E N T E D E I N V E N C I O N

formulada el 21 de Junio de 1963, con el Nº 289.251

e n

E S P A Ñ A

por VEINTE años

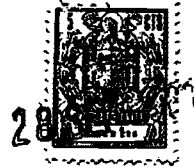
a nombre de GREAT LAKES CARBON CORPORATION, entidad norteamericana, establecida en 18 East 48th Street, Nueva York, N.Y., Estados Unidos de América, por:

"METODO PARA FABRICAR UN CUERPO DE CARBON"

=====

Este invento se refiere a un nuevo proceso y un nuevo aparato para la producción de cuerpos de carbón cocidos, y asimismo para la producción de cuerpos grafitados a partir de los mismos.

5 Un objeto del presente invento es producir
cuerpos de carbón cocidos de elevada densidad aparente,
baja porosidad y permeabilidad y un mínimo de grietas y
fisuras, utilizando un nuevo tipo de proceso de calentamiento por presión de fluido y un nuevo aparato que es
10 fácilmente controlable y adaptable a diversas cargas.



Mediante el presente invento se llega a la conclusión de que ello se consigue si una masa carbonácea conformada capaz de fundirse y desarrollar una unión de carbón permanente, tal como una masa cruda conformada de carbón en polvo y de un aglomerante coquizable fusible, es sometida, al mismo tiempo que se trata por calor, a las técnicas de presión descritas en detalle a continuación, mientras la masa carbonácea conformada o masa cruda conformada está dentro de una envuelta deformable e impermeable, en un sistema de presión de fluido capaz de proporcionar presiones de fluido controladas muy variables dentro de dicha envoltente, fuera de dicha envoltente, y presiones diferenciales entre las mismas. Preferentemente, la masa carbonácea cruda conformada se sujeta en su posición en la envuelta impermeable rodeando una parte de ella, o toda, con un polvo refractario tal como polvo de carbón o un agregado especialmente cribado compuesto de cok, o grafito, u otras partículas refractarias. Tales partículas pueden ser finas inmediatamente junto al cuerpo que está siendo tratado por calor, y más gruesas las que están más alejadas, a fin de facilitar el escape de volátiles. También preferentemente han sido provisto medios para reducir o incrementar la presión de fluido en el interior de dicha envoltente y para reducir o incrementar la presión de fluido exterior a dicha envoltente -y en cualquier fase del ciclo de tratamiento por calor- o sea, antes o después de que la masa carbonácea conformada o cuerpo crudo conformado que está siendo calentado alcance su



temperatura máxima. Típicamente, la presión diferencial resultará incrementada sobre la inicialmente empleada al calentar el cuerpo, por reducirse la presión dentro de dicha envolvente antes de que la presión exterior a dicha envolvente sea reducida; y también preferentemente antes de que tenga lugar cualquier solidificación o endurecimiento sustancial de la masa carbonácea conformada. En algún momento durante el ciclo de tratamiento por calor, bien durante la fase de aumento de la temperatura, o bien mientras la temperatura del cuerpo se mantiene sustancialmente constante, o durante la fase en que la temperatura del cuerpo que está siendo tratado empieza a disminuir, o durante varias o todas esas fases, pero típicamente mientras el cuerpo que está siendo tratado está todavía en estado "plástico" y apto para ser consolidado, o posee un elevado grado de "conformabilidad" o "moldabilidad", existe una presión diferencial entre la presión exterior a la envolvente impermeable, deformable y que aloja al cuerpo, y la presión interior a la envolvente, siendo la presión exterior la más elevada, de modo que se ejerza una potencia o fuerza densificante considerable sobre el cuerpo mientras está en un estado muy sensible a la densificación y antes de que haya tenido lugar cualquier solidificación o endurecimiento sustancial de la masa "plástica". Esta fuerza densificadora es de naturaleza mecánica, siendo ejercida directamente sobre el cuerpo que está siendo tratado o bien por la envolvente impermeable o bien por el material de relleno que hay dentro de dicha envolvente, o



por una y otro, pero es el resultado del sistema de presión de fluido anteriormente descrito, o bien éste la proporciona indirectamente.

5 La temperatura máxima a la cual se calienta la masa de carbón cruda conformada mientras está en la envolvente impermeable es generalmente de 800° C, aproximadamente; y una temperatura típica utilizada es de 600° C aproximadamente, si bien éstas temperaturas pueden variar en función de las características de diseño del aparato. El régimen de calentamiento de la masa conformada conviene que no sea superior a unos 100° C por hora, aunque esto dependerá de una serie de factores, tales como el tamaño del cuerpo que esté siendo tratado, los materiales a partir de los cuales se hace ese cuerpo y su contenido en volátiles, etc. Después del anterior tratamiento por calor, las masas de carbón están generalmente en estado semicocido o cocido, y tienen una densidad elevada y porosidad y permeabilidad bajas. Entonces pueden sacarse de las envolventes impermeables y calentarse nuevamente hasta la temperatura de cocción, por ejemplo, hasta una temperatura entre 800° C y 1250° C aproximadamente, caso de no haber sido ya calentadas a una temperatura suficientemente elevada; a continuación puede también calentarse, si se desea, a la temperatura de grafitado, por ejemplo a una temperatura comprendida entre 2000° C y 3000° C aproximadamente. Este último proceso puede realizarse de acuerdo con las técnicas convencionales de cocción y/o de grafitado. Asimismo, si se desea, entre la cocción y la recocción o entre la cocción y el grafitado puede intercalarse un tratamiento

10

15

20

25

30

289251



convencional de impregnación, por ejemplo con brea,
para incrementar aún más la densidad del producto fi-
nal cocido o grafitado. No obstante, este procedimien-
to no comprende el aspecto inventivo de este proceso,
5 e incluso sin necesidad de ese tratamiento la densidad
de los cuerpos producidos es excepcionalmente elevada
y su permeabilidad sumamente baja comparadas con las
de los cuerpos convencionales no impregnados cocidos
o grafitados.

10 La comprensión a fondo de este invento y de
los medios de ponerlo en práctica se verá facilitada
haciendo referencia a los esquemas, en los que:

La Figura 1 es un diagrama esquemático de un
sistema o aparato para poner en práctica el invento;

15 Las Figuras 2, 3, 4 y 5 son vistas de cortes
verticales de varias muestras alternativas que contie-
nen medios y disposiciones de relleno especialmente
adaptados para la cocción de cuerpos de carbón de for-
ma tubular.

20 Para la puesta en práctica del invento una
mezcla apropiada de material de carbón granular en pol-
vo y un aglomerante, se conforma en un cuerpo de la for-
ma deseada, tal como el cilindro sólido 1, representa-
do en corte en la Figura 1. Se construye una envolvente
25 4 sensible o deformable a la presión, conductora del
calor y hermética a los flúidos, que suele hacerse con
una cubierta de cobre de espesor apropiado, de forma y
tamaño tales que el cuerpo de carbón sin tratar a ser
calentado pueda colocarse en la misma y, preferiblemen-
30 te, totalmente rodeado por un material de relleno 2 es-



table al calor, conductor del calor y refractario,
tal como polvo de grafito, dentro de dicha envolven-
te. Esta envolvente 4 suele tener una forma caracte-
rística de salchicha con extremos algo más gruesos;
5 o forma de bote cilíndrico con tapones de latón en
el fondo y en la tapa soldados con soldadura co-
rriente o de plata al mismo, o sujetos mecánicamente
de forma que cierren los extremos y los hagan estancos
a los gases. La propia envólvente puede conformarse
10 a partir de una sola pieza o de una serie de piezas
de cubierta de la longitud deseada, entrelazando o
solapando los bordes y luego soldándolos. Los medios
de transmisión de la presión 5 están conectados en
forma análoga estanca a los gases a través de una
15 abertura en la tapa del bote o envolvente 4 a fin de
que pueda ser controlada la presión del gas dentro
de la envolvente. Esta presión de fluido interior a
la envolvente será siempre de tipo gaseoso y podemos
designarla como P_I .

20 La envolvente 4 sensible o deformable a la
presión, impermeable o impenetrable a los flúidos
(excepto por la abertura intencional destinada a la
línea 5), va montada por cualquier procedimiento apro-
piado en el vaso de presión 6 que está diseñado y cons-
25 truido de modo que pueda soportar las temperaturas y
las presiones que se desarrollan al poner en práctica
los procesos del invento. Estas temperaturas y presio-
nes se analizarán más detalladamente a continuación.

30 Como se ha representado esquemáticamente en
la Figura 1, el vaso de presión 6, convenientemente



28

apoyado, por ejemplo mediante las patas 6a, se conecta,
con líneas de presión apropiadas entre un sistema de
alimentación de presión de fluido 7-14 (tal como el de-
pósito 7 que contiene nitrógeno gaseoso cuya presión
ha sido aumentada por el compresor 14), y un medio 8
para recibir los volátiles que se desprenden de la
masa conformada durante la operación de tratamiento
por calor, o a continuación de esta. El depósito 7
está dotado de una válvula estándar reductora de la
presión de la línea y dos manómetros 7a y 7b para me-
dir la presión del depósito y la presión de la línea,
respectivamente. El compresor 14 va provisto de una
válvula de derivación 14a regulada por la presión.

La presión de la envolvente 4 puede descargarse a tra-
vés de los medios de descarga 5 que son los mismos em-
pleados para transmitir la presión del interior de la
envolvente o presión interna. Los medios de descarga 5
deben estar conectados, desde luego, a través de una
abertura de la envolvente que suele estar en su tapa,
pueden asimismo extenderse una distancia sustancial
en el interior de la envolvente y contienen perfora-
ciones tales como las designadas por 5a. Los medios 8
pueden estar rodeados por una camisa refrigerada por
agua 8b para ayudar a condensar los volátiles. La vál-
vula 8a va provista de medios para mantener bajo pre-
sión los medios 8 de recepción de volátiles, y tam-
bién de medios para drenar los volátiles condensados
cuando así se desee.

El sistema de presión de fluido puede utili-
zar varios materiales diferentes a fin de proporcionar



la presión requerida gaseosa o de tipo flúido. Los materiales, no obstante, deben ser preferiblemente estables a las temperaturas de 600° C como mínimo. Son apropiados los gases tales como nitrógeno, argon o gases de combustión, etc. y pueden utilizarse tanto para la presión interna dentro de dicha envolvente impermeable 4, como para la presión externa que actúa fuera de dicha envolvente pero dentro del vaso de presión 6.

En la Figura 1 la presión controlada interna es proporcionada o alimentada por la línea de presión 5 y la presión externa por la línea 10. Estas líneas se han dotado de válvulas apropiadas de admisión de presión, tales como la 15 y la 11, o válvulas de descarga 18 y 20 para proporcionar presiones externa e interna controladas. La presión ejercida sobre el cuerpo es de naturaleza mecánica, y representa la diferencia entre la presión externa y la presión interna. Esta presión diferencial puede representarse por la ecuación $P_D = P_E - P_I$. Esta presión diferencial mecánica deberá ser transmitida al cuerpo preferiblemente a través de un material refractario tal como 2 ó 23, aunque en algunos casos puede ser transmitida por la envolvente 4 (ó 22a ó 22b) directamente.

Generalmente se habrá provisto una presión interna relativamente elevada dentro de la envolvente 4. (El manómetro 17 indica esta presión). La finalidad de esta presión interna elevada es mantener pequeño el volumen de los gases que se desprenden del cuerpo 1, de modo que en el cuerpo únicamente puedan formarse

289251



vacíos pequeños y se eviten los grandes. Después que el cuerpo haya sido tratado por calor durante el espacio de tiempo deseado y a la temperatura deseada, suele hacerse que disminuya en primer lugar la presión (P_I) dentro de la envolvente 4, para permitir el escape de los volátiles, y luego se disminuye igualmente la presión externa (P_E). La presión diferencial (P_D), que como ya dijimos es de naturaleza mecánica, aumenta por supuesto durante el intervalo en que P_E se mantiene constante y P_I disminuye. A fin de evitar que haga explosión la envolvente deformable, P_I no es nunca superior a P_E durante ninguna parte del ciclo principal del tratamiento por calor.

En ciertos casos puede ser conveniente rodear la envolvente, después de insertada en el vaso de presión o mientras se está procediendo a ello, de un líquido tal como una aleación de plomo de bajo punto de fusión, a fin de disponer de un sistema de transferencia de calor altamente eficiente. En tal caso, la presión externa que actúa sobre la envolvente será derivada de ese medio, así como de la presión de gas proporcionada por la línea 10. Por presión de fluido entendemos o bien presión de gas o bien presión de líquido; pero la presión interna transmitida por la línea 5 deberá ser siempre de tipo gaseoso. Los medios 8 para recoger los volátiles pueden consistir típicamente en un colector frío diseñado de forma que reciba, recoja y condense los volátiles, estando al propio tiempo presurizado



5 y conectado a la presión del interior de la envolvente 4 que contiene el cuerpo de carbón 1 a ser calentado. Esta conexión se hace mediante el elemento 5 que sirve a un tiempo de medio de transmisión de la presión y de tubo de descarga para la envolvente que contiene la muestra.

10 Una vez colocada la muestra en la envolvente hermética a los gases o en los medios 4 para alojar la muestra y, como es característico, totalmente rodeada de material refractario 2, los medios de transmisión de presión 5 quedan entonces acoplados entre la parte superior de la misma y el colector frío a través de la tapa 16 del vaso de presión 6. La tapa 16 está roscada o conectada en cualquier otra forma 15 estancia a la presión al vaso de presión 6, y los racores y acoplamientos a través de dicha tapa son también estancos a la presión. La tapa del vaso de presión 6 acopla también los medios de alta presión de fluido 7-14 a las líneas transmisoras de presión 10 20 y 5. Se ha provisto una válvula apropiada 11 para controlar la cantidad de presión en el vaso de presión 6 ejercida sobre el exterior de la envolvente hermética a los gases 4 (o que es transmitida al metal líquido, caso de emplearse un metal líquido). El 25 manómetro 12 indica la presión en todo momento, La válvula limitadora de presión 13 actúa como mecanismo de seguridad. La válvula 11 controla o limita tanto la presión interna como la externa proporcionadas al sistema; pero la válvula 15 proporciona un control 30 adicional de la presión interna.

283251



Según una disposición característica, el vaso de presión 6 está situado dentro de un horno 9 de modo que el cuerpo conformado de carbón 1 interior a la envolvente metálica 4 e interior al vaso de presión pueda calentarse hasta la temperatura deseada. El horno puede calentarse característicamente mediante llama de gas o por inducción. El disco de ruptura 19 protege contra las presiones excesivas o peligrosas desarrolladas en el vaso de presión 6. El vaso de presión está construido de un material apropiado, tal como acero inoxidable, y tiene espesor suficiente para soportar fácilmente las temperaturas y presiones que se producen.

También pueden emplearse otros medios para calentar el vaso de presión, tales como serpentines calentadores que lo rodean directamente. O bien puede utilizarse un vaso de pared fría en el cual las paredes del vaso pueden enfriarse externamente o internamente mediante flúidos circulantes, o por radiación, o por otros medios y disponerse un horno eléctrico en torno a la envolvente deformable y aislado térmicamente de la pared interior del vaso de presión.

El manómetro 17 registra la presión del total de flúido que pasa por la válvula 15 así como la presión originada por el desprendimiento de volátiles de la masa carbonácea conformada cruda que se está calentando. La válvula 18 permite la descarga de esos volátiles a la atmósfera o a cualquier otra parte, y la reducción de esas presiones a cualquier nivel que se desee.



En cierto momento durante el ciclo de tratamiento por calor se establece una presión diferencial entre las presiones externa e interna, siendo superior la primera. Como resulta evidente de la descripción de la Figura 1, ello puede conseguirse fácilmente por una serie de procedimientos. Por ejemplo, pueden disponerse los niveles de presión de modo que tanto la presión externa (P_E) como la presión interna (P_I) sean relativamente altas inicialmente, tales como 154 kg/cm^2 y 126 kg/cm^2 , respectivamente, con una presión diferencial inicial (P_D) de 28 kg/cm^2 , y en el punto o intervalo deseado del ciclo, la presión externa es mantenida constante y la presión interna descargada a la atmósfera, o bien la presión interna es mantenida constante y se aumenta la presión externa, de modo que la presión diferencial (P_D) pasa de 28 kg/cm^2 a, por ejemplo, 84 kg/cm^2 aproximadamente, o superior. O bien puede operarse con una presión externa elevada y una presión interna relativamente baja iniciales, manteniendo la diferencia y/o las presiones constantes a lo largo del ciclo; o bien con unas presiones iniciales, tanto interna como externa, relativamente bajas, con el subsiguiente incremento de la presión externa, etc. Las presiones absolutas interna y externa utilizadas pueden variarse ampliamente siempre que no se rebasen las limitaciones del sistema particular. La presión diferencial puede también variar ampliamente, por ejemplo desde una diferencia tan pequeña como unos $3,5 \text{ kg/cm}^2$ ó $7,0 \text{ kg/cm}^2$ hasta una diferencia de presión que puede alcanzar los



1963

350 kg/cm², y aún pueden utilizarse presiones o
diferencias de presiones muy superiores a esta última. La cantidad de presión diferencial utilizada dependerá en cierto modo de las características del
5 cuerpo que se trata por calor, de la fase del proceso en el que se aplica o se establece (siendo máxima típicamente durante la fase de descarga del proceso, como se verá más claramente al considerar los ejemplos), y también de la resistencia de la
10 envolvente impermeable a los flúidos 4. La concepción del sistema y la construcción de la envolvente son tales que esta resulta muy resistente al reventamiento debido a las presiones de flúido (presión externa igual o superior a la presión interna) ejercidas sobre ella y en su interior, principalmente
15 debido a que la carga de presión es soportada por el cuerpo que está siendo tratado por calor o por los materiales de relleno que rodean al mismo. La membrana impermeable es presionada contra el cuerpo
20 sólido o los materiales de relleno, en lugar de serlo contra un espacio vacío, y basta con que la membrana sea suficientemente fuerte o gruesa para que pueda ajustarse a un pequeño porcentaje de contracción del cuerpo, para no ser perforada por el material de relleno, que podría tener bordes relativamente
25 agudos, etc. Al mismo tiempo, la envolvente es radialmente deformable o sensible a la presión diferencial que actúa sobre la misma, dentro de esos límites, de modo que esa presión diferencial de tipo -
30 flúido (convertida en presión mecánica por la envol-

289251



5 vente) puede transmitirse contra el cuerpo que es-
tá siendo tratado por calor o contra el material de
relleno en forma de polvo refractario colocado en
el interior de dicha envolvente y en torno al cuer-
po que está siendo tratado por calor. La relación
típica que se establece es tal que en un momento de-
terminado una presión mecánica isostática y sustan-
cialmente uniforme en todas direcciones se aplica
contra el cuerpo carbonáceo que está siendo calenta-
do. Esa relación es asimismo tal que muchos de los
poros del cuerpo carbonáceo, y de las fisuras que
normalmente podrían desarrollarse durante su trata-
miento por el calor, quedan cerradas o inhibido su
desarrollo, debido a la presión mecánica que lo man-
tiene intacto.

15 En un ejemplo típico el cuerpo se calienta
conforme a cualquier programa apropiado de tratamien-
to por calor, por ejemplo desde unos 100° C por hora
hasta unos 600° C, durante cuya fase, o después, (pero
antes de que el cuerpo se haya endurecido, o solidifi-
cado, o "fraguado" sustancialmente) se realiza la des-
carga reduciendo para ello primeramente la presión
dentro de la envolvente hermética a los gases 4 (lle-
vando por tanto la presión diferencial a su valor má-
ximo), y luego reduciendo la presión dentro del vaso
de presión 6. Esto se consigue abriendo la válvula
18 y luego la válvula de purga 20. Un programa de
descarga típico comprende reducir la presión interna
a un régimen logarítmico de disminución tal que la
presión al cabo de una hora sea la décima parte de la



presión inicial, por ejemplo de 126 kg/cm^2 a $12,6 \text{ kg/cm}^2$, seguido de una descarga relativamente rápida a la presión atmosférica. A continuación se descarga la presión externa a la presión atmosférica a un régimen conveniente. Esta descarga puede asimismo desarrollarse, opcionalmente, de tal modo que la presión en cada una de las líneas vaya disminuyendo gradualmente y a un régimen uniforme durante un período de dos horas aproximadamente, pero manteniéndose constante la presión diferencial. Después de lo cual pueden descargarse rápidamente las líneas de presión a la presión atmosférica. El control de la presión diferencial puede ejercerse de otras muchas formas apropiadas.

La producción de cuerpos de carbón de alta densidad de forma tubular se consigue empleando construcciones de envolvente estancas a los gases y disposiciones del cuerpo crudo y del material de relleno tales como las ilustradas en las Figuras 2, 3, 4 y 5, cuyas figuras ilustran algunas formas alternativas de conseguirlo.

Las envolventes empleadas en el invento pueden ser de forma cilíndrica, o de forma tubular o anular, o de forma esférica, o de forma de salchicha, etc. La consideración importante es que deben estar construidas de modo que sean susceptibles de ser acopladas, de un modo sustancialmente estanco a la presión, a un sistema de alimentación de presión; y que al propio tiempo se deformen u obedezcan fácilmente a las presiones de fluido que actúan sobre ellas de modo que conviertan esas fuerzas en fuerzas mecánicas y transmitan dichas



fuerzas sustancialmente en conjunto, sin rupturas, a las partículas refractarias y/o a los cuerpos de carbón crudos que están siendo tratados por calor. Si la envolvente es demasiado gruesa no puede responder de un modo efectivo a las presiones diferenciales de fluido que actúan sobre ella; si es demasiado delgada, puede romperse durante la fase de tratamiento por calor o puede ser difícil mantener su integridad durante la fabricación y el acoplamiento al sistema de alimentación de presión. En general, el espesor de la pared de la envolvente deberá ser aproximadamente proporcional al tamaño del cuerpo que esté siendo tratado y ser asimismo característicamente tan delgado como sea práctico y compatible con la resistencia a la perforación, al desgarre, a la ruptura, etc. Se ha comprobado que los espesores de envolventes de materiales tales como cobre, etc., comprendidos entre 0,38 mm y 0,89 mm proporcionan resultados esencialmente equivalentes para presiones de fluidos típicas (es decir de 126 kg/cm² de presión interna y 154 kg/cm² de presión externa) en la producción de cuerpos relativamente pequeños (por ejemplo, de cilindros de 31,7 mm de diámetro y de 20,3 mm de longitud); pero tales espesores se dan únicamente a modo de sugerencia y pueden variarse ampliamente, como antes se dijo, por ejemplo dentro de la gama comprendida entre 0,20 y 1,14 mm dependiendo del tamaño de los cuerpos que se desee tratar, de las posibilidades de presión del sistema empleado, etc.

En la Figura 2, un tubo crudo extruido 21

283251



se inserta en una envolvente impermeable 22 de forma anular, de forma y tamaño apropiados, y hecha de un material apropiado tal como lámina de cobre o de aluminio. Antes de insertar el tubo extruído sin tratar deberá llenarse una parte de la envolvente, correspondiente al extremo cerrado 24, con parte del medio de acondicionamiento seleccionado 23. El tubo extruído sin tratar se insertará a continuación en el anillo y en el espacio vacío que quede entre la superficie exterior del tubo y la pared exterior 22a de la envolvente, así como el espacio anular comprendido entre la superficie interior del tubo y la pared interior 22b de la envolvente, se llenarán con el medio de relleno seleccionado. Por tanto, en esencia, el tubo extruído sin tratar quedará completamente rodeado en todas sus superficies por una capa del medio seleccionado y este, a su vez, encerrado en la envolvente impermeable. Las cubiertas exterior e interior 22a y 22b, respectivamente, de la envolvente anular, pueden ser del mismo espesor o de distintos espesores.

La envolvente 22 se conecta luego a la línea transmisora de presión de fluido 5, hecha estanca a la presión, por ejemplo mediante soldadura con plata, o sellado mecánico, etc., como anteriormente vimos, y se procede a tratar en forma esencialmente análoga al caso de la envolvente que contenía la muestra de la Figura 1 ya descrita.

En la Figura 3, al igual que en la Figura 2, se inserta un tubo extruído sin tratar 21 en una envolvente impermeable de forma anular 22. En esta materiali

280251



5

zación la pared interior 22b de la envolvente queda directamente en contacto con la pared interior del tubo 21. La superficie periférica exterior del tubo 21 está rodeada de un relleno refractario 23 y luego por la pared exterior 22a de la envolvente.

10

La Figura 4 ilustra una materialización justamente inversa de la correspondiente a la Figura 3, y en la cual la pared exterior 22a de la envolvente está en contacto directo con la superficie exterior del tubo 21; y la pared interior 22b está separada de la superficie interior del tubo por el relleno 23.

15

La Figura 5 muestra otra alternativa de empleo de una envolvente impermeable de forma anular, tal como la empleada en las Figuras 2, 3 y 4 para el tratamiento de cuerpos de carbón de forma tubular. En la Figura 5 se emplea una envolvente tal como la utilizada en la Figura 1, y el tubo extruído sin tratar queda alojado en su interior sin contacto alguno con sus paredes y asimismo totalmente rodeado del medio de relleno 23.

20

Con los siguientes ejemplos y tablas se pretende describir más detenidamente el presente invento e ilustrar algunas de las variables del mismo:

25

EJEMPLO I

30

Se preparó una mezcla de 75 partes de polvo de grafito, 25 partes de Thermax (una marca registrada de la R.T. Vanderbilt Company para un carbón blando, semireforzador, finamente dividido, obtenido por descomposición térmica o cracking de gas natural) 34 partes



de brea y 6 partes de ácido esteárico, y fué extruída en forma de varilla cilíndrica; esta varilla fué colocada en la envolvente hermética a los gases 4 de la Figura 1, construída de una material de cubierta de cobre con un espesor de 0,546 mm, rodeada de material de relleno 2, constituído por polvo de grafito, en el interior de dicha envolvente. Se colocó la envolvente en un vaso de presión 6 tal como el ilustrado esquemáticamente en la Figura 1 y anteriormente descrito, y se establecieron las diversas conexiones de presión necesarias. El sistema de presión de flúido era a base de nitrógeno. La envolvente y su contenido se calentaron a continuación a una temperatura de unos 590°C durante un período de 6 horas aproximadamente, utilizándose una presión externa procedente de la línea 10 de 154 kg/cm² aproximadamente, y una presión interna controlada procedente de la línea 5, (o procedente de las presiones desarrolladas por los volátiles de la brea o por ambos) de 126 kg/cm² aproximadamente, o bien una presión diferencial de 28 kg/cm². A continuación se descargó la presión interna a la presión atmosférica, como anteriormente dijimos, durante un período de 60 minutos aproximadamente hasta unos 126 kg/cm², descargando luego rápidamente a la atmósfera (con lo que se desarrollaba una presión máxima diferencial de 154 kg/cm²) después de lo cual se descargó también la presión externa o se disminuyó hasta la presión atmosférica a un régimen conveniente. El cuerpo conformado que originalmente poseía una densidad en su estado sin tratar de 1,61 gramos por centímetro cúbico,



tenía entonces una densidad aparente de 1,85 gramos por centímetro cúbico. La subsiguiente grafitación (2500° C) dió por resultado un cuerpo con una densidad aparente de 1,91 gramos por centímetro cúbico y una constante de permeación al helio, a temperatura ambiente y a 2,8 kg/cm² de presión, de 0,005 cm²/seg.

En contraste con esto, un cuerpo grafitado de la misma fórmula y extruído y grafitado de la misma forma pero cocido de una forma convencional (muestra de varilla sin tratar colocada en un recipiente de acero inoxidable soportado y rodeado por partículas de grafito de calibre de malla comprendido entre los calibres de malla - 35 / + 65 y calentado a un régimen de calentamiento a lo largo de 7 días hasta 950° C y enfriado luego lentamente hasta la temperatura ambiente), tenía una densidad aparente de 1,70 g/cc y una constante de permeación de 0,31 cm²/seg. (Todas las permeabilidades medidas como indicamos anteriormente).

El procedimiento general del Ejemplo 1 fué repetido con variaciones en la formulación de los materiales a partir de los cuales se hacía el cuerpo, en el espesor y forma y tipo de la envolvente impermeable, en los programas de presiones y de descarga de presiones utilizados, etc. En los siguientes ejemplos y tablas se han consignado estas variaciones y los resultados obtenidos.

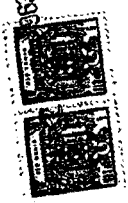
289251

El Ejemplo 1 fué repetido empleando la misma formulación y el mismo material extruído con una densidad, en estado sin tratar, de 1,61 g/cc. Sin em-



bargo, las presiones iniciales utilizadas se variaron como se indica en la Tabla 1 que representa el efecto general de las diversas presiones sobre las propiedades de los cuerpos producidos.

289251



T A B L A I

Ejemplo	Presiones iniciales			D.A. S/co cocido (2501.0)	Gratitado (2501.0)	Permeabilidad (cm/seg)
	P _E (kg/cm ²)	P _I (kg/cm ²)	P _D (kg/cm ²)			
5	154	126	28	1,85	1,91	0,005
2	154	56	98	1,80	1,84	0,015
3	154	147	7	1,84	* N.M.	* N.M.
4	70	56	14	1,78	1,86	0,024
5	70	28	42	1,72	1,78	0,049

15 * No. Medido

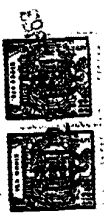
28 9251



En cada uno de los ejemplos anteriores, sustancialmente inmediatamente a continuación de haberse alcanzado una temperatura de 590° C, la presión interna fué gradualmente reducida hasta la décima parte de su valor original a lo largo de un período de 60 minutos (o sea, de 56 a 5,6 kg/cm², ó de 147 a 14,7 kg/cm²), en la forma anteriormente descrita, descargándose luego rápidamente a la atmósfera, y a continuación se descargó igualmente la presión externa a la presión atmosférica a un régimen conveniente. La temperatura de 590° C (aproximadamente) se mantuvo constante durante la fase de descarga. Esa es también la técnica de descarga seguida en todos los ejemplos que siguen, a no ser que se especifique otra diferente.

Los siguientes ejemplos contenidos en la Tabla II ilustran el efecto de algunas de las variables del proceso sobre las varillas extruidas (densidad en estado sin tratar 1,66 g/cc) hechas de mezclas de grafito-brea, no conteniendo Thermax. Las mezclas fueron preparadas con 100 partes de grafito y 40 partes de brea, siendo tales las dimensiones del grafito que 33-1/3 partes del mismo tenían un tamaño de partícula equivalente a que un 55% + 5% aproximadamente pasaran por la malla -200, que al menos el 96% de otras 33-1/3 partes pasaran por la malla -200, y que el 70% al menos de las otras 33-1/3 partes estuvieran comprendidas entre las mallas -35 y +65.

28 9251



T A B L A II

Presiones Iniciales

Ejemplo	P_E (kg/cm ²)	P_I (kg/cm ²)	P_D (kg/cm ²)
5	174	126	28
7	174	126	28
8	174	63	91
10	174	0	2200

Tiempo de ca lentamiento (horas)	D.A. g/cc semitonales (59010)	Gracitado (2900r 9)	Permeabilidad
3 - 1/2	1,78	1,76	0,128
6	1,84	1,82	0,057
6	1,81	1,76	0,320
6	1,77	1,73	0,378

28 3254



Pueden determinarse fácilmente regímenes de calentamiento que no sean demasiado rápidos ni demasiado lentos para alcanzar las propiedades óptimas para formulaciones particulares o para presiones o para otras dimensiones de cuerpos que se sometan al proceso. Por ejemplo, en la Tabla II el régimen de calentamiento correspondiente al Ejemplo 6 (3 - 1/2 horas para alcanzar 590°C) era demasiado rápido y las propiedades del cuerpo producido eran inferiores a las del cuerpo producido en el Ejemplo 7, idéntico excepto en que el régimen de calentamiento era de 6 horas para alcanzar los 590°C.

Correspondientemente, pueden determinarse asimismo fácilmente las condiciones de presión a los regímenes de descarga óptimos. Las Tablas I y II ilustran los efectos de las diferentes condiciones de presión. La Tabla III ilustra los efectos de los diferentes regímenes de descarga. En cada uno de los ejemplos se utilizó el mismo material extruido "sin tratar" usado en el Ejemplo I. El Ejemplo I está repetido para fines de comparación.

289251

T A B L A III



Presiones Iniciales

Ejemplo	Presiones Iniciales			D.A. g/cc	Grado	Semitenido (5900)	Sgrafitado	Procedimiento de descarga
	P_2 (kg/cm ²)	P_1 (kg/cm ²)	P_D (kg/cm ²)					
5	154	126	28	1,85	1,61	1,91		El anteriormente descrito
10	154	126	28	1,81	1,61	1,81		El mismo que para el Ejemplo 1 pero la descarga comienza a 4750C en vez de a 5900C
11	137,2	126	11,2	1,70	1,61	* N.M.		El mismo que para el Ejemplo 1 pero a lo largo de un periodo de 4 horas en vez de 60 minutos
12	142,8	126	16,8	1,76	1,61	N.M.		El mismo que para el Ejemplo 1 pero las presiones se han mantenido sustancialmente constantes durante 4 horas antes de empezar a descargar
15	154	126	28	1,70	1,61	N.M.		Presión interna descargada a 70 kg/cm ² en 5 minutos, luego presión externa descargada a 70 kg/cm ² en 5 minutos, luego ambas presiones descargadas simultáneamente a la presión atmosférica.
20								

* No Medido

200251



4

C. 1000000

5

La Tabla anterior muestra que un período de descarga demasiado largo, o un período de descarga demasiado breve, o el hecho de empezar la descarga demasiado pronto o demasiado tarde pueden afectar adversamente a las propiedades de los cuerpos producidos de conformidad con este invento.

10

15

20

25

30

También se variaron ampliamente los tipos de materiales carbonáceos o las mezclas empleadas para hacer la masa conformada carbonácea. Algunas variantes han sido ya estudiadas o incluídas en ejemplos, a saber, las mezclas de grafito-thermax (negro de humo obtenido por descomposición térmica) - brea, y las mezclas de grafito-brea. También se emplearon en el invento otros varios materiales o mezclas carbonáceas entre los cuales están incluídos masas conformadas carbonáceas preparadas a partir de coque de petróleo crudo; o mezclas de coque de petróleo crudo y un agente plastificante tal como el aceite de antraceno o aceite de creosota; o mezclas de coque de petróleo calcinado y brea; o mezclas de coque de petróleo calcinado, thermax y brea, etc. Un cuerpo conformado (sin tratar D.A. de 1,63 g/cc), tratado en la misma forma que el cuerpo del Ejemplo 1 y partiendo de una formulación asimismo idéntica excepto en que se emplearon partículas de coque de petróleo calcinado en lugar de partículas de grafito, y en que se emplearon 25 partes de brea en lugar de 34 partes, dió por resultado un cuerpo semicocido (590°C) con una densidad aparente de 1,76 g/cc y un cuerpo grafitado (2500°C) con una densidad aparente de 1,88 g/cc y una constante de permeabilidad de 0,0015 cm²/seg. Una masa conformada carbonácea de 100 partes de coque

289251



de petróleo crudo (aproximadamente el 13% de contenido en materias volátiles) y 12,4 partes de aceite de antraceno (con una D.A. en estado "sin tratar" de 1,18 g/cc), al semicocerse a 590°C tuvo una D.A. de 1,30 g/cc, y al grafitarse a 2500°C tuvo una D.A. de 1,89 g/cc y una constante de permeabilidad de 0,0021 cm²/seg. Cuerpos conformados idénticos tratados por calor en forma convencional dieron por resultado cuerpos grafitados con las siguientes propiedades comparativas:

	D.A. (g/cc)	Permeabilidad (cm ² /seg.)
Cuerpo de coque de petróleo calcinado	1,77	0,25
Cuerpo de coque de petróleo crudo	1,80	0,26

Las mayores densidades y menores permeabilidades obtenidas mediante la elaboración de conformidad con este invento, son evidentes. Tales mejoras son el resultado de la nueva combinación del invento de presiones internas neumáticas controladas actuando dentro del propio cuerpo y una presión mecánica controlada actuando sobre el cuerpo durante la cocción.

Como resulta evidente de los anteriores ejemplos, los materiales y mezclas de partida que pueden emplearse en el presente invento son muchos y variados. Como ya se indicó, en algunos casos puede utilizarse coque de petróleo crudo (contenido típico en volátiles del 10 - 20%) exclusivamente, en cuyo caso la fusión y el desarrollo de una unión de carbón permanente, a la que se hace referencia en la nota de reivindicaciones, se desarrolla en su seno



Clasificación 51

5

y autógenamente. Tal es también en gran manera el caso cuando se emplea un agente plastificante con coque de petróleo crudo. Más característicamente el material de partida estará constituido por una mezcla de partículas de grafito y un aglomerante, o partículas de coque calcinado y un aglomerante, siendo frecuente el empleo del thermax en ambos casos.

10

En el Ejemplo 1 se emplearon algunas partes de ácido esteárico ya que el cuerpo 1 "sin tratar" preconformado fué formado por un proceso de extrusión. Debe quedar bien entendido que también pueden emplearse otras técnicas de conformado para preparar los cuerpos "sin tratar" que hayan de ser tratados por calor, entre cuyas técnicas se incluyen el moldeado o el conformado isostático, etc.

15

20

La "masa carbonácea conformada capaz de fundirse y desarrollar una unión de carbón permanente" a que se alude en la Nota de reivindicaciones se entiende, por consiguiente, que puede referirse a uno cualquiera de los anteriores materiales o cualquier otro material carbonáceo adecuado. Si se añade un aglomerante, éste puede ser cualquier material que funda y que deje un residuo carbonáceo al ser calentado (coquizable). Entre otros materiales típicos adecuados tenemos: la brea, el alquitrán de hulla, las resinas fenólicas, el alcohol de furfurilo, los productos de condensación de furano-cetona, etc., los cuales se emplearán corrientemente en cantidades comprendidas entre 15 y 50 partes por cada 100 partes del material carbonáceo en polvo, en peso.

25

30

Esta solicitud, que corresponde a la presenta-

28 9251



da en Estados Unidos de América el 25 de Junio de 1962, bajo el número 204.922, se acoge a los beneficios del artículo 51 del vigente Estatuto sobre Propiedad Industrial.

5

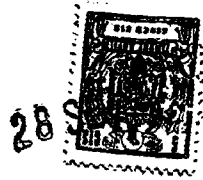
N O T A

Los puntos de invención propia y nueva, que se presentan para que sean objeto de esta solicitud de Patente de Invención en España, por VEINTE años, son los siguientes:

1.- Un método para fabricar un cuerpo de carbón de alta densidad a partir de una masa carbonácea conformada capaz de fundirse y desarrollar una unión de carbón permanente que comprende el tratamiento por el calor de dicha masa conformada mientras está bajo presión mecánica transmitida por una envolvente conductora del calor, deformable é impermeable a los flúidos, estando dicha envolvente impermeable bajo presión en un sistema de flúido a presión que es capaz de suministrar una presión flúida controlada fuera de dicha envolvente, y dentro de dicha envolvente, y presiones diferenciales entre las mismas.

2.- Un método de acuerdo con el punto 1 en que dicha presión mecánica se transmite directamente, al menos en parte, a la superficie de dicha masa conformada por medio de partículas refractarias que están en contacto con la superficie de dicha masa conformada y que están encerradas en dicha envolvente impermeable.

30



3.- Un método de acuerdo con los puntos 1 ó 2 en el que la presión para dicho sistema de fluido a presión es suministrada por un gas estable hasta temperaturas de 600°C como mínimo.

5 4.- Un método de acuerdo con los puntos 1 ó 2 en el que, mientras el cuerpo está siendo tratado por calor, la presión dentro de dicha envolvente es desde 7 kg/cm² aproximadamente hasta 147 kg/cm², la presión fuera de dicha envolvente es desde 14 kg/cm² aproximadamente hasta 154 kg/cm² aproximadamente, la presión diferencial entre las mismas varía desde 7 kg/cm² aproximadamente hasta 147 kg/cm² aproximadamente y la presión externa es siempre mayor que la presión interna.

10 5.- Un método de acuerdo con los puntos 1 ó 2 en que dicha envolvente impermeable está formada por una cubierta flexible de cobre.

15 6.- Un método para fabricar un cuerpo de carbón de alta densidad a partir de una masa carbonácea conformada capaz de fundirse y desarrollar una unión de carbón permanente que comprende el tratamiento por el calor de dicha masa conformada mientras está bajo presión mecánica transmitida por una envolvente conductora del calor, deformable e impermeable a los fluidos, estando dicha envolvente impermeable bajo presión en un sistema de fluido a presión con lo que la presión dentro de dicha envolvente es por lo menos de 3,5 kg/cm² aproximadamente y es sustancialmente menor que la presión en el exterior de dicha envolvente durante el calentamiento de la masa; y, después de calentar dicha masa hasta una temperatura elevada deseada, pero antes

28 9251



de que se produzca ninguna solidificación o endurecimiento sustancial de la misma, aumentar esta presión diferencial.

5

7.- Un método de acuerdo con el punto 6 en el que dicha presión diferencial se aumenta manteniendo constante la presión interna y aumentando la presión externa.

5

8.- Un método de acuerdo con el punto 6 en el que se aumenta dicha presión diferencial reduciendo la presión dentro de dicha envolvente antes de reducir la presión fuera de dicha envolvente.

10

9.- Método para fabricar un cuerpo de carbón.

Tal y como se ha descrito en la Memoria que antecede, representado en el dibujo que se acompaña y para los fines especificados.

15

Esta Memoria consta de treinta y dos hojas escritas a máquina por una sola cara.

Madrid,

28 SEP. 1963

P.A.

Alfonso de Eizabure
Por Poder

20

289251

MES.

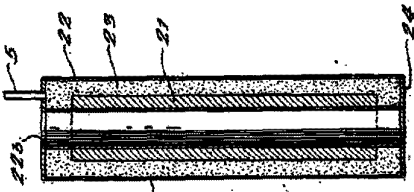


FIG 2

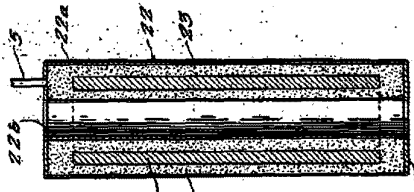


FIG 3

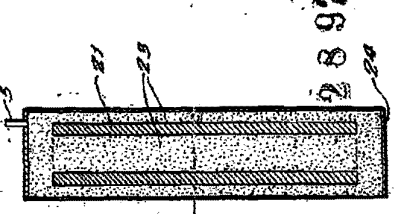


FIG 4

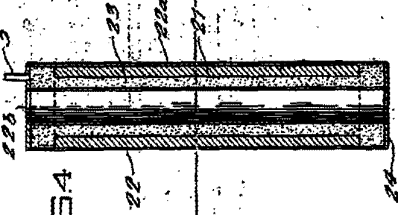


FIG 5

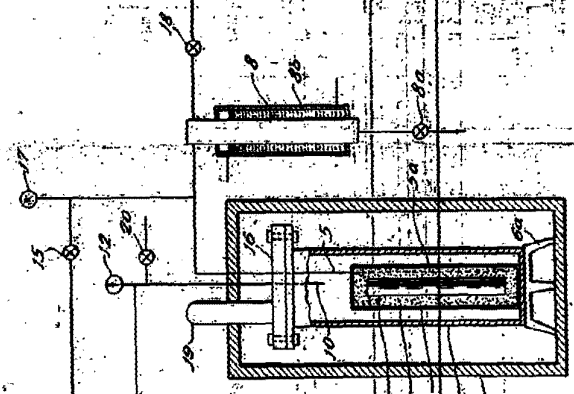


FIG 6

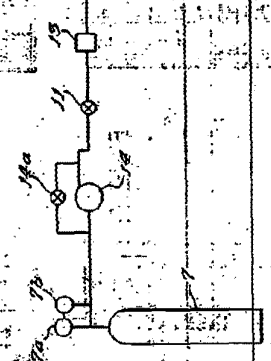


FIG 7

289251

C. E. ...