



14 SET. 1972

PATENTE DE INVENCION

406675

406675

Memoria Descriptiva

sobre: F.P. 9-5-75

Procedimiento para la obtención de diamante.

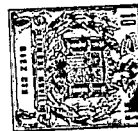
Int. Cl.: C 01 B

Solicitante EDENVALE ENGINEERING WORKS (PROPRIETARY) LIMITED,
entidad sud africana, residente en 8th Floor, 45
Main Street, Johannesburg, Transball, República Sud
Africana.

=====

La presente invención se refiere a materiales duros y, de un modo más particular a la síntesis del diamante.

5. El diamante se ha producido, en el pasado, sintéticamente sometiendo un material carbonoso, por ejem

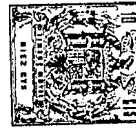


406675

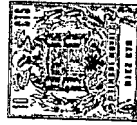
- plo grafito o carbono amorfo, a presiones y temperaturas en la región estable del diamante, v.g., en las condiciones en que el diamante es el alotropo estable del carbono, en presencia de metal elegido del grupo de hierro, cobalto, níquel, rutenio, rodio, paladio, osmio, iridio, platino, cromo, tantalio y manganeso o una aleación conteniendo uno o más de estos metales. No se ha determinado con certeza qué función realiza el metal o la aleación en la conversión, pero es un hecho generalmente aceptado que el metal o la aleación actúa como catalizador o disolvente. En esta memoria descriptiva, el término "disolventes metálicos tradicionales para el carbono" se utilizará para describir estos metales y aleaciones.

- Para efectuar la conversión de un carbono que no se encuentra en estado de diamante en diamante son necesarias presiones y temperaturas muy elevadas. Cuando se emplea un disolvente metálico tradicional en la conversión, son necesarias presiones de 55 kilobares y temperaturas del orden de 1.200 a 2.500°C, pudiéndose tomar como referencia a este respecto la patente Estadounidense N° 2.947.609, concedida a Herbert M Strong y cedida a la General Electric Company.

- Para llevar a cabo la síntesis del diamante se puede emplear cualquiera de un cierto número de tipos diferentes de aparatos. Uno de dichos aparatos es el llamado aparato de "cinta" objeto de la patente Estadounidense N° 2.941.248, concedida a Howar Tracey Hall y cedida a la General Electric Company. Este aparato consiste esencialmente en una cinta anular o elemento de molde que tiene una abertura en sección decreciente a través del mismo y un par de machos frustrrocónicos concéntricos que se pueden introducir en aberturas para definir una cámara de reacción en la misma. Entre los machos y



- el elemento de molde o matriz se emplea un material de junta apropiado, como es la pirofilita con fines de estanqueidad y sobre la superficie interior de la matriz encarada a la zona de reacción para aislar térmicamente esta parte de la matriz.
5. La temperatura de la cámara de reacción se puede elevar conectando los elementos de macho a una fuente de energía eléctrica creando de este modo un circuito de calentamiento por resistencia a través de los machos y los materiales reactivos en el recipiente de reacción.
10. A parte del método descrito, se han propuesto otros métodos para convertir en diamante carbono que no se encuentra en estado de diamante. Un ejemplo de estos métodos se describe en la patente Estadounidense Nº 3.488.153, concedida a Francis P. Bundy, y cedida a la General Electric Company.
15. Este método consiste esencialmente en convertir en diamante material carbonaceo en ausencia de disolventes metálicos tradicionales para el carbono empleando presiones y temperaturas extremadamente elevadas, v.g., presiones superiores a 120 kilobares y temperaturas superiores a 3.500°C.
20. En todos los métodos de la tecnología anterior, para convertir en diamante carbono que no se encuentra en estado de siamante, son necesarias condiciones muy honerosas que reducen la vida útil del aparato empleado.
- Actualmente se ha averiguado, y este descubrimiento
25. forma la base del presente invento, que si se emplea como fuente de carbono una nueva clase de composiciones de materia prima que contienen carbono, se pueden producir diamantes con temperaturas y presiones mucho menores que las empleadas en métodos de la tecnología anterior.
30. Según el invento, un método de producir diamante com-



- prende la operación o etapa de someter una composición que contiene carbono, prácticamente exenta de enlaces covalentes carbono-hidrógeno, a condiciones de temperatura y presión suficientes para causar la descomposición del compuesto y desprender átomos de carbono o grupos de átomos de carbono y efectuar la conversión de los átomos de carbono o grupos de átomos de carbono desprendidos en diamante.
- 5.

- Además, según el invento, el método consiste esencialmente en las operaciones o etapas de habilitar una zona de reacción; colocar una composición, según se ha definido, en la zona de reacción; someter la composición a condiciones de temperaturas y presión suficientes para causar la descomposición del compuesto y desprender átomos de carbono o grupos de átomos de carbono; mantener las condiciones para efectuar la conversión de los átomos de carbono o grupos de átomos de carbono desprendidos en diamantes; descomprimir y permitir que la temperatura se reduzca prácticamente a la temperatura del ambiente y recuperar diamante del contenido de la zona de reacción.
- 10.
- 15.

- Las condiciones y composición de materia prima se pueden elegir de forma que se produzca la fusión y descomposición del compuesto.
- 20.

- Se ha descubierto que ciertos compuestos halogenados son composiciones particularmente idóneas para poner en práctica el invento. Estos compuestos halogenados son los hexahalo**ben**zenos, que tienen la fórmula $C_6(Hal)_6$, los hexahalo**et**anos que tienen la fórmula $C_2(Hal)_6$ y las tetrahalo**quin**onas que tienen la fórmula $C_6O_2(Hal)_4$. En todas estas fórmulas Hal representa un átomo de halógeno. En particular, los derivados clorados de estos compuestos, v.g., hexaclorobenceno, hexacloro-
- 25.
- 30.



etano y tetracloroquinona (cloranil) han demostrado ser los más idóneos.

5. Cuando se emplean estos compuestos halogenados como fuente de carbono, se genera una gran cantidad de gas halógeno durante la descomposición y pueden ocurrir explosiones. Para evitar las explosiones es preferible emplear un adsorbente para el gas halógeno. Un adsorbente apropiado es un metal alcalino o alcalinotérreo, particularmente el litio.

10. En general, es un hecho aceptado en esta rama de la industria que es necesario que prevalezcan condiciones en la región estable del diamante, v.g., por encima de la llamada línea de Berman-Simón, antes que se produzca el diamante. Un trazado gráfico de la línea de Berman-Simón, tomada de Berman and Simon, Zeit, F. Elektrochemie, 59, 355 (1.955) se ilustra como línea A en la figura 1 del dibujo adjunto. En esta figura, la temperatura en grados centígrados se ha trazado a lo largo de la abcisa y la presión en kilobares se ha trazado a lo largo de la ordenada. Como contradicción a estas enseñanzas de la tecnología anterior, se ha descubierto sorprendentemente que, con el método del invento, se puede producir diamante en condiciones de temperatura y presión por debajo de la línea de Berman-Simón. Por lo tanto, se pueden emplear temperaturas y presiones considerablemente menores que lo que es posible con métodos de la tecnología anterior.

25. Las condiciones reales empleadas pueden variar dentro de amplios límites. No obstante, en general, no se utilizarán temperaturas superiores a 2.000°C y presiones superiores a 100 kilobares. Si se desea, el método se puede efectuar en presencia de un disolvente metálico tradicional para el carbono y en condiciones de presión y temperatura necesarias para

30.



que el metal actúe como disolvente.

- Si se emplean condiciones por encima de la línea Berman-Simón, es preferible poner la composición en estas condiciones elevando la presión rápidamente al valor deseado y elevando después la temperatura gradualmente, v.g., a un régimen comprendido entre 20°C y 30°C por minuto, hasta alcanzar el valor deseado. La línea B en la figura 1 ilustra un ejemplo de este método. Si las condiciones a emplear se encuentran por debajo de la línea de Berman-Simón, es preferible seguir entonces una línea escalonada, según ilustra por ejemplo la línea C en la figura 1.

- Cualquier aparato de temperatura y presión elevadas, capaz de producir las temperaturas y presiones necesarias, resultará satisfactorio. Uno de dichos aparatos es el aparato de cinta descrito en la patente Estadounidense de Hall Nº 2.941.248 mencionada anteriormente.

A continuación se describen ejemplos que ilustran el invento.

EJEMPLO 1

- Se comprimió polvo de hexaclorobenceno en forma de discos, y se colocaron estos discos y discos de litio en una taza de hierro de una forma alterna, v.g., disco de litio, después un disco de hexaclorobenceno, después un disco de litio, y así sucesivamente hasta que se llena la taza. La taza se envuelve en papel de tántalo y se coloca en una cápsula de alta presión en un aparato de cinta del tipo descrito en la patente Estadounidense de Hall Nº 2.941.248.

- El aparato se hizo funcionar de una forma normal para elevar la presión en la zona de reacción rápidamente a aproximadamente 40 kilobares. Después, se elevó gradualmente la tem



5. temperatura de la zona de reacción a un régimen de aproximadamente 20°C a 30°C por minuto hasta alcanzar un valor de aproximadamente 700°C . Las condiciones de temperatura y presión elevadas se mantuvieron por espacio de 15 a 30 minutos. Entonces se descomprimió y se permitió que el contenido de la cápsula se enfriara a la temperatura del ambiente.

10. Se sacó el contenido de la cápsula y empleando técnicas de recuperación tradicionales se recuperó del contenido un cierto número de pequeños cristales que fueron identificados como diamante por análisis de rayos X.

EJEMPLO 2

15. Se siguió el mismo procedimiento que en el ejemplo 1 a excepción de que se utilizó una taza de pirofilita y no se emplearon discos de litio. Las condiciones de temperatura y presión utilizadas fueron de 1.600°C y 50 kilobares, respectivamente.

Un exámen del contenido de la cápsula reveló un cierto número de pequeños cristales que se identificaron como diamante por análisis de rayos X.

20. EJEMPLOS 3 a 5

Se adoptó el mismo procedimiento que en el ejemplo 1, excepto que se emplearon las condiciones de temperatura y presión indicadas a continuación:

Ejemplo	Presión (kilobares)	Temperatura ($^{\circ}\text{C}$)
25. 3	42,0	900
4	25,0	300
5	50,0	1150

30. En cada caso, se recuperaron cristales de diamante, identificados por análisis con rayos X, del contenido de la cápsula de reacción.



406675

EJEMPLOS 6 a 8

5. Se adoptó el mismo procedimiento que en el ejemplo 2, a excepción de que se emplearon las condiciones de temperatura y presión indicadas a continuación y se siguió una línea escalonada ilustrada por la línea C en la figura 1 para poner la zona de reacción en las condiciones especificadas.

Ejemplo	Presión (kilobares)	Temperatura (°C)
6	25	800
7	30	1000
10. 8	40	1100

En cada caso, se recuperaron cristales de diamantes, identificados por análisis de rayos X, del contenido de la cápsula de reacción.

EJEMPLO 9

15. Se adoptó el mismo procedimiento que en el ejemplo 1, a excepción de que el compuesto utilizado era hexaclorohetano y las condiciones de temperatura y presión empleadas fueron de 900°C y 45 kilobares, respectivamente.

20. Se recuperaron del contenido de la cápsula de reacción cristales de diamante, identificados por análisis por rayos X.

EJEMPLO 10

25. Se adoptó el mismo procedimiento que en el ejemplo 1, a excepción de que el compuesto utilizado era cloranil y las condiciones de temperatura y presión empleadas eran de 900°C y 45 kilobares, respectivamente.

Se recuperaron del contenido de la cápsula de reacción cristales de diamante, identificados por análisis con rayos X.

30. Los puntos que representan las condiciones de temperatura y presión de cada uno de los ejemplos arriba mencionados se han trazado en la figura 1.



- N O T A -

- Descrita suficientemente la naturaleza del invento, así como la manera de realizarlo en la práctica, debe hacerse constar que las disposiciones anteriormente indicadas, son susceptibles de modificaciones de detalle en cuanto no alteren su principio fundamental, siendo lo que constituye la esencia del referido invento y por lo que se solicita Patente de Invención por 20 años en España, sobre: PROCEDIMIENTO PARA LA OBTENCIÓN DE DIAMANTE; caracterizándose por lo siguiente:
5. 10. 15. 20. 25. 30.
- 1ª.- Procedimiento para la obtención de diamante, caracterizado porque comprende la operación de someter una composición que contiene carbono prácticamente exenta de enlaces covalentes carbono-hidrógeno, a condiciones de temperatura y presión suficientes para causar la descomposición del compuesto para desprender átomos de carbono o grupos de átomos de carbono y efectuar la conversión en diamante de los átomos de carbono o grupos de átomos de carbono desprendidos.
- 2ª.- Procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado porque comprende las operaciones o etapas de habilitar una zona de reacción; colocar una composición que contiene carbono prácticamente exenta de enlaces covalentes carbono-hidrógeno en la zona de reacción; someter la composición a condiciones de temperatura y presión suficientes para causar descomposición del compuesto para desprender átomos de carbono o grupos de átomos de carbono; mantener estas condiciones para efectuar la conversión en diamante de los átomos de carbono o grupos de átomos de carbono desprendidos; descomprimir y permitir que la temperatura vuelva prácticamente a la temperatura del ambiente, y recuperar diamante del contenido de la zona de reacción.



406675

- 3^a.- Procedimiento según las reivindicaciones 1 ó 2, caracterizado porque la composición es un compuesto elegido del grupo de los hexahalobencenos.
5. 4^a.- Procedimiento según la reivindicación 3, caracterizado porque el compuesto es hexaclorobenceno.
- 5^a.- Procedimiento según las reivindicaciones 1 ó 2, caracterizado porque la composición es un compuesto elegido del grupo de los hexahaloetanos.
10. 6^a.- Procedimiento según la reivindicación 5, caracterizado porque el compuesto es hexacloroetano.
- 7^a.- Procedimiento según las reivindicaciones 1 ó 2, caracterizado porque la composición es un compuesto elegido del grupo de las tetrahaloquinonas.
15. 8^a.- Procedimiento según la reivindicación 7, caracterizado porque el compuesto es tetracloroquinona.
- 9^a.- Procedimiento según cualquiera de las reivindicaciones 3 a 8, caracterizado porque se emplea un adsorbente para el gas halógeno producido durante la descomposición del compuesto.
20. 10^a.- Procedimiento según la reivindicación 9, caracterizado porque el adsorbente es un metal alcalino o metal alcalinotérreo.
- 11^a.- Procedimiento según la reivindicación 9, caracterizado porque el adsorbente es litio.
25. 12^a.- Procedimiento según cualquiera de las reivindicaciones anteriores, caracterizado porque las condiciones de temperatura y presión empleadas se encuentran por debajo de 2.000°C y 100 kilobares, respectivamente.
30. 13^a.- Procedimiento según cualquiera de las reivindicaciones anteriores, caracterizado porque las condiciones emplea



das se encuentran por encima de la línea de Bermen-Simon y por que la composición se pone en estas condiciones elevando la presión rápidamente al valor de presión deseado y elevando después la temperatura gradualmente hasta alcanzar el valor de temperatura deseado.

5.

14ª.- Procedimiento según la reivindicación 13, caracterizado porque la temperatura se eleva hasta alcanzar el valor de temperatura deseado a un régimen comprendido entre 20 °C y 30°C por minuto.

10.

15ª.- Procedimiento según cualquiera de las reivindicaciones 1 a 12, caracterizado porque las condiciones empleadas se encuentran por debajo de la línea de Berman-Simon y por que la composición se pone en estas condiciones elevando la temperatura y la presión de una manera gradual hasta alcanzar los valores deseados.

15.

16ª.- Procedimiento para la obtención de diamante; tal y como queda sustancialmente descrito en la presente Memoria e ilustrado en los adjuntos dibujos.

Esta Memoria consta de 11 hojas escritas a máquina por una sola cara.

20.

14 SET. 1972

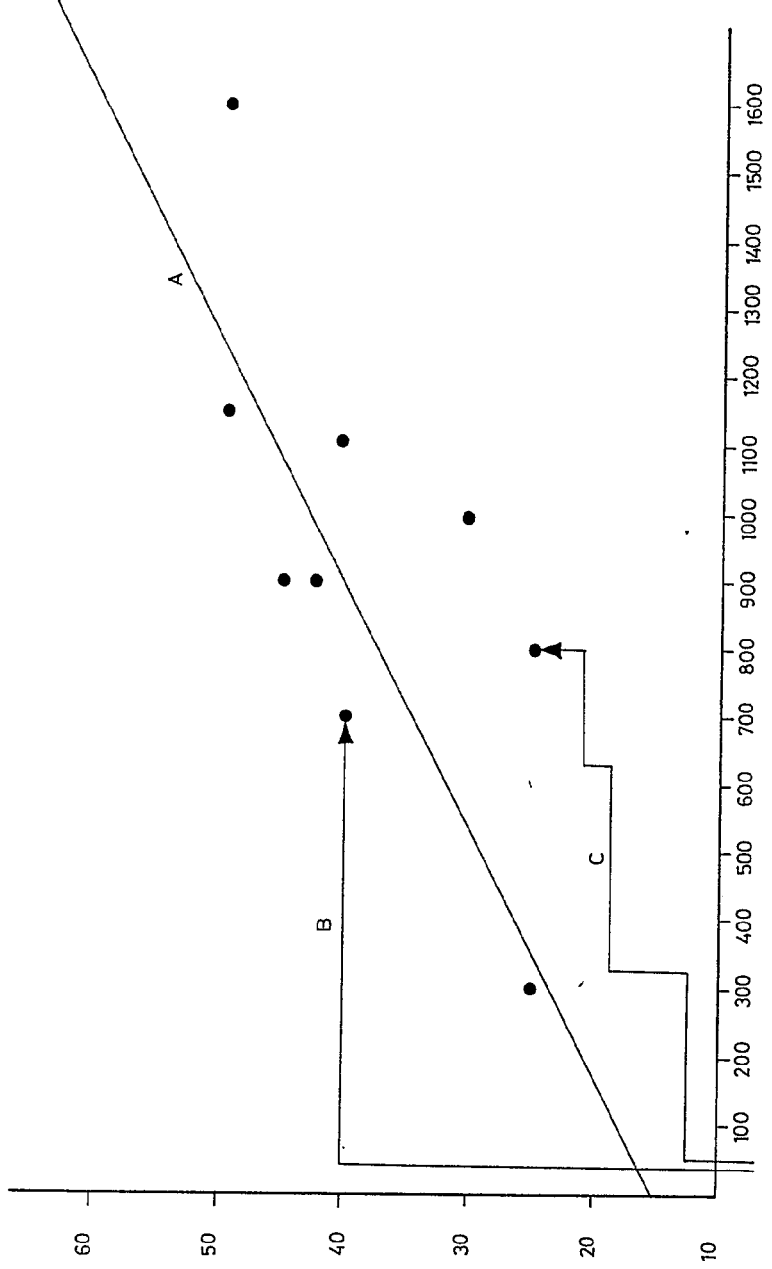
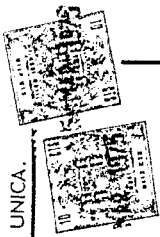
Madrid,

EDENVALE ENGINEERING WORKS (PROPRIETARY) LIMITED

J. GOMEZ ACEBO Y MODEY
Por el Firmado L. Gaita Ferrández

406675

406675

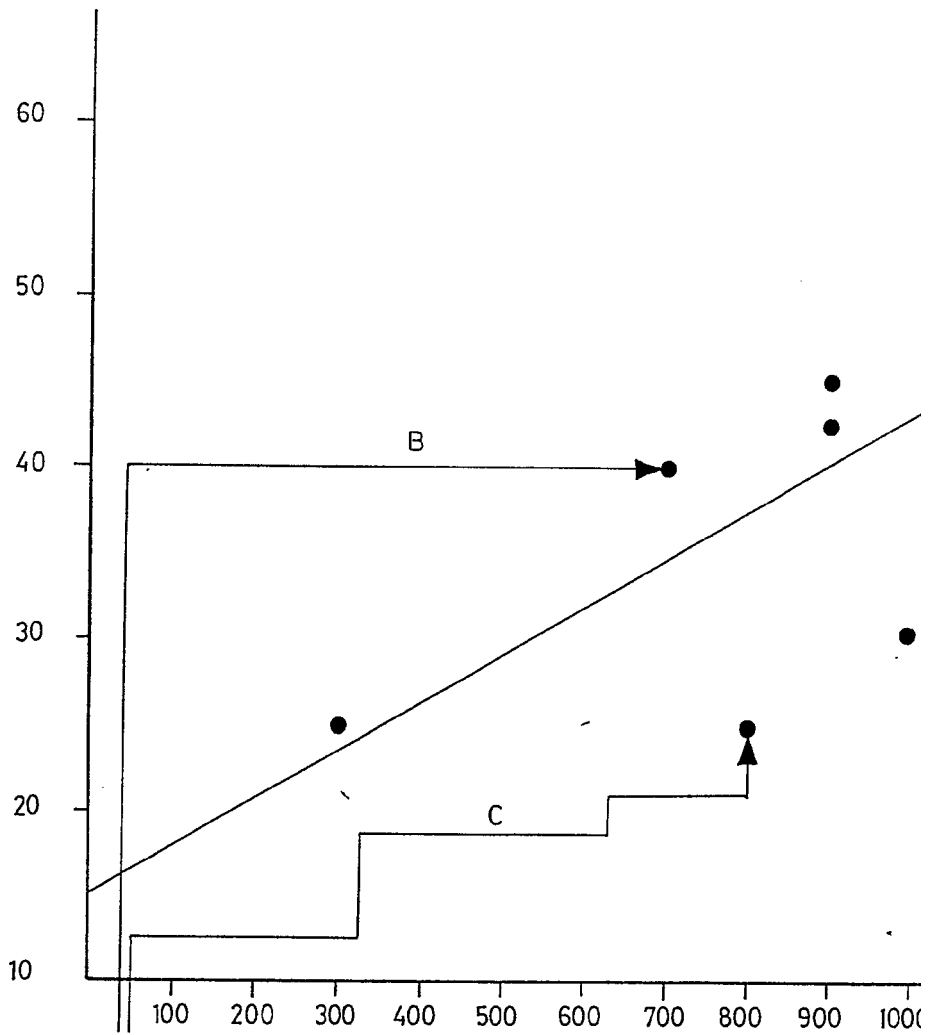


ESCALA VARIABLE

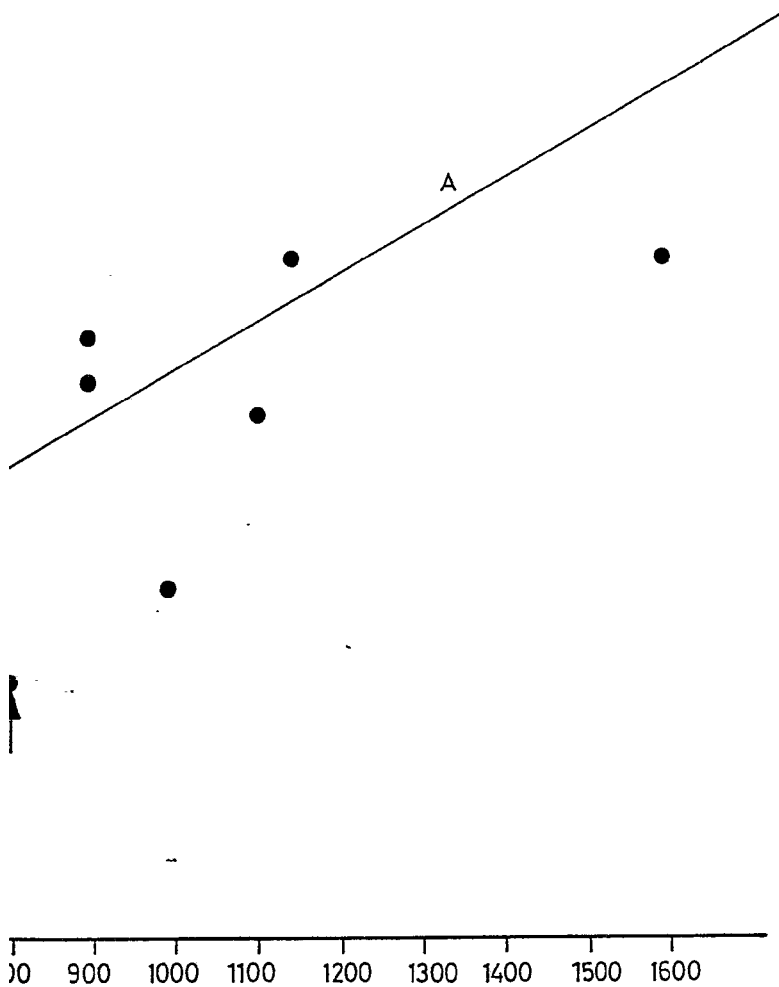
ESCALA VARIABLE.

MADEIRA 05 MAR 1936
 I. ESPINOSA ACEVEDO Y RODRIGUEZ
 P. P. Humador: L. Costa Fariña

406675



406675



ESCALA
VARIABLE

Madrid 25 MAR 1976
I. GÓMEZ ACEBO Y MODET
p. Firmado: L. García Fernández