



ДЕРЖАВНА СЛУЖБА  
ІНТЕЛЕКТУАЛЬНОЇ  
ВЛАСНОСТІ  
УКРАЇНИ

УКРАЇНА

(19) **UA** (11) **104179** (13) **U**  
(51) МПК  
**C01B 31/06** (2006.01)

**(12) ОПИС ДО ПАТЕНТУ НА КОРИСНУ МОДЕЛЬ**

<p>(21) Номер заявки: <b>u 2015 08040</b></p> <p>(22) Дата подання заявки: <b>12.08.2015</b></p> <p>(24) Дата, з якої є чинними права на корисну модель: <b>12.01.2016</b></p> <p>(46) Публікація відомостей про видачу патенту: <b>12.01.2016, Бюл.№ 1</b></p>	<p>(72) Винахідник(и): <b>Козуб Павло Анатолійович (UA), Черніков Ігор Олександрович (UA), Баглюк Генадій Анатолійович (UA), Куровський Валентин Якович (UA), Козуб Світлана Миколаївна (UA), Чернікова Раїса Павлівна (UA)</b></p> <p>(73) Власник(и): <b>Козуб Павло Анатолійович, вул. Барнаульська, 27, м. Харків, 61013 (UA)</b></p>
---	---

**(54) СПОСІБ ОЧИСТКИ ПОЛІКРИСТАЛІЧНИХ АЛМАЗІВ**

**(57) Реферат:**

Спосіб очистки полікристалічних алмазів розплавом  $\text{NaNO}_3$  та  $\text{NaOH}$  шляхом взаємодії алмазографітової шихти у кількості 5-15 % з розплавами лугу та селітри у співвідношенні від 3:1 до 1:3. При цьому процес проводиться перші 30-60 хв. при 220-300 °С, після чого температура протягом 20-30 хв. поступово підвищується до 450-600 °С.

**UA 104179 U**



Корисна модель належить до хімічних процесів виробництва та очистки синтетичних алмазів і може бути використаний для вилучення алмазів із продукту динамічного синтезу ультрадисперсних полікристалічних алмазів.

Відомі методи одержання ультрадисперсних та полікристалічних алмазів із їх сумішей з графітом та аморфним вуглецем (алмазографітової суміші) шляхом окислення його розплавами, рідкими та твердими реагентами [1, 2, 3], які основані на різній швидкості реакції окислення алмазу та не алмазних форм вуглецю у присутності кислих та лужних окисників.

Недоліками цих методів є те, що вони потребують великої кількості реактивів, що затрудняє утилізацію відходів, негативно впливають на стан навколишнього середовища, зокрема потребують спеціального обладнання приміщень та забезпечення заходів з охорони праці робітників алмазографітового виробництва.

Обробка шихти при підвищеному тиску і температурі 320-400 °С водним розчином азотної кислоти або розчином лужного металу (K, Na) [4, 5] дозволяє знизити небезпеку хімічного процесу, але ці методи характеризується складністю обладнання та малою продуктивністю внаслідок відносно низької температури проведення хімічного процесу.

Найбільш близьким за технічною суттю є спосіб взаємодії алмазографітової суміші статичного синтезу з розплавом нітратів і гідроксидів калію або натрію при температурі від 300 до 650 °С [6]. Який дозволяє повністю видаляти графіт з сировини.

Основними недоліками способу-прототипу є те, що велика активність ультрадисперсного вуглецю, що міститься у сировині разом з крупними частками графіту, і який має велику питому поверхню, приводить до нестабільності температурного режиму процесу - можливості саморозігріву реакційної суміші (з можливістю вибуху) з повним окисленням всіх форм вуглецю і зниження таким чином сумарного ступеня очистки. З іншої сторони, зниження температури обробки призводить до неповної очистки сировини від крупних часток графіту.

Таким чином, зазначені недоліки способу-прототипу об'єктивно закономірні, оскільки вони визначаються механізмом взаємодії компонентів суміші з реагентами та їх не можна усунути в рамках способу-прототипу.

В основі запропонованого способу поставлено задачу шляхом взаємодії алмазографітової шихти у кількості 5-15 % з розплавами лугу та селітри у співвідношенні від 3:1 до 1:3 спростити технологію та підвищити продуктивність окиснення графіту, при цьому запропонована корисна модель дозволяє:

- підвищити ступінь переробки сировини;
- зменшити втрати сировини;
- зменшити пожежну безпеку виробництва;
- збільшити економічну ефективність;
- збільшити потужність виробництва.

Істотною відмінністю корисної моделі від способу-прототипу, що забезпечує технічний результат є те, що процес проводиться перші 30-60 хв. при 220-300 °С, після чого температура поступово підвищується до 450-600 °С за 20-30 хв.

Нами встановлено, що використання таких співвідношень компонентів і такої температури технологічних параметрів, що заявляється, дозволяє підвищити потужність виробництва, зменшити втрати сировини, підвищити ступінь очистки алмазу до 99,99 %, знизити безпеку виробництва та знизити собівартість кінцевого продукту на 30-50 %.

Позитивний ефект, що спостерігається в запропонованій корисній моделі, можна пояснити наступними фактами.

По-перше, на відміну від алмазографітової шихти статичного синтезу алмазографітова шихта динамічного синтезу містить в собі не тільки графіт, але й аморфний вуглець, який є значно більш реакційно здатний.

По-друге, і графіт і алмаз в шихті мають велику дисперсність, а саме тому високу реакційну здатність.

По-третє, кількість неалмазних форм вуглецю (графіт та аморфний вуглець) в 3-5 разів перевищує кількість ультрадисперсних алмазів, що також підвищує реакційну здатність суміші.

Все це призводить до того, що швидкість реакції окиснення вуглецю у розплаві з ультрадисперсними алмазами на порядок перевищує швидкість реакції для сировини з вмістом алмазних мікропорошків. Це викликає локальне підвищення температури з можливим запаленням всієї реакційної суміші і повним вигоранням всіх вуглецевих форм включно з ультрадисперсними алмазами.

Проведені теоретичні розрахунки і експериментальні дослідження показали, що найбільш ефективним шляхом вирішення цієї проблеми є зниження кількості алмазографітової шихти у реакційній суміші до 15 %. В цьому випадку кількість енергії що виділяється є недостатньою для

утворення локальних осередків загоряння, оскільки швидкість реакції є меншою за швидкість відводу тепла від зони реакції і технологічний процес перебігає стабільно.

Одночасно з тим було встановлено, що при зменшенні концентрації алмазографітової шихти у реакційній суміші менше ніж 5 % швидкість реакції окиснення падає настільки, що значна частина неалмазних форм вуглецю не встигає прореагувати і кінцева ступінь очистки не перевищує 98 %.

Крім того, було встановлено, що для сировини, яка містить ультрадисперсні алмази необхідно підтримувати температуру не вище 300 °С. Ця температура не призводить до значних втрат алмазів навіть при витримці в реакційній суміші більш ніж 2 години. У той же час, підвищення температури в період максимальної швидкості реакції до 320 °С призводить до зменшення виходу кінцевого продукту майже на 20 %.

При температурі реакційної суміші менше ніж 220 °С енергії хімічного процесу на поверхні вуглецю не вистачає для початку реакції окиснення і повне видалення (більше ніж 99,9 %) неалмазних форм вуглецю перевищує 90 хвилин.

У той же час, аналіз різних видів сировини полікристалічних алмазів показав, що більше половини графітових часток, з яких складається сировина мають розміри, більші ніж 10 мкм, для яких температурний діапазон обробки більш прийнятний від 450 до 600 °С.

Експериментальні дані показали, можливість забезпечення цього діапазону, але тільки після майже повного видалення ультрадисперсних часток графіту та аморфного вуглецю.

Таким чином параметри технологічного процесу визначаються фізико-хімічними основами протікання процесу і вибираються таким чином, щоб забезпечити найкращу ефективність процесу.

Нами встановлено, що при співвідношенні NaOH: NaNO<sub>3</sub> від 1:3 до 3:1, кількість алмазографітової шихти з вмістом ультрадисперсних алмазів повинно складати не менше 5 % і не більше 15 %, що створює умови стабільного протікання реакції окиснення і запобігає можливому samozапаленню реакційної суміші.

При температурі реакції менше ніж 220 °С енергії реакції окиснення вуглецю є недостатньою для її початку і тому загальна швидкість реакції незначна. При температурі вище 300 °С швидкість окиснення алмазу підвищується до такого ступеня, що частина дрібно алмазів окислюється разом з графітом і вихід готової сировини значно знижується.

Часу у 30-60 хвилин достатньо для окиснення всіх ультрадисперсних часток графіту та аморфного вуглецю, що дозволяє підвищити температуру реакції до 450-600 °С і повністю видалити без втрат ультрадисперсних алмазів великі частки графіту. Час, необхідний для завершення цієї стадії, становить від 20 до 30 хв.

Спосіб здійснюють таким чином:

Алмазографітову шихту змішують в заданих пропорціях з сумішшю селітри і лугу, нагрівають до заданої температури і витримують до припинення бурхливої реакції розплаву з дрібнодисперсною частиною сировини, після цього температуру підвищують до повного зникнення частинок неалмазних форм вуглецю на поверхні розплаву. Суміш охолоджують і розділяють на тверду і рідкі фази за допомогою розчинення у воді. Тверда фаза, при необхідності, піддається подальшій обробці для повного видалення залишків оксидів металів.

Приклад 1. 220 г алмазографітової шихти детонаційного синтезу, яка містить 30 % полікристалічного алмазу змішують з 600 г NaOH і 1600 г NaNO<sub>3</sub>. Суміш перемішують, нагрівають до температури 250 °С. Через 40 хвилин, після припинення бурхливої реакції, суміш поступово нагрівають до температури 550 °С до повного зникнення часток графіту на поверхні розплаву та зміни кольору розплаву з чорного на світло-сірий, суміш охолоджують і розділяють на тверду і рідкі фази розчиненням у воді. Кінцевий продукт вміщує не більше 0,01 % неалмазних форм вуглецю.

Приклад 2. 160 г алмазографітової шихти детонаційного синтезу, яка містить 20 % полікристалічного алмазу змішують з 600 г NaOH і 1600 г NaNO<sub>3</sub>. Суміш перемішують, нагрівають до температури 280 °С. Через 30 хвилин, після припинення бурхливої реакції, суміш поступово нагрівають до температури 450 °С до повного зникнення часток графіту на поверхні розплаву та зміни кольору розплаву з чорного на світло-сірий, суміш охолоджують і розділяють на тверду і рідкі фази розчиненням у воді. Кінцевий продукт вміщує не більше 0,01 % неалмазних форм вуглецю.

Приклад 3. 120 г алмазографітової шихти детонаційного синтезу, яка містить 30 % полікристалічного алмазу змішують з 1400 г NaOH і 600 г NaNO<sub>3</sub>. Суміш перемішують, нагрівають до температури 290 °С. Через 30 хвилин, після припинення бурної реакції, суміш поступово нагрівають до температури 600 °С до повного зникнення часток графіту на поверхні розплаву та зміни кольору розплаву з чорного на світло-сірий, суміш охолоджують і розділяють

на тверду і рідкі фази розчиненням у воді. Кінцевий продукт містить не більше 0,01 % неалмазних форм вуглецю.

У такий спосіб обробка суміші алмазу та вуглецю розплавами NaOH та NaNO<sub>3</sub> дозволяє зменшити втрати алмазів до 0,2 % та підвищити ступінь очистки алмазів до 99,99 %.

5 Джерела інформації:

1. Путятин П.А. и др. Химические методы извлечения алмазов из продуктов синтеза. - Сверхтвердые материалы. - 1982. - № 1. - с. 20-28.

2. А.С. СССР 1770271, С01 В31/06 друк.23.10.1992 бюл. № 39.

10 3. Путятин А.А. Никольская И.Н. Химические методы извлечения алмазов из продуктов синтеза. - Сверхтвердые материалы. - 1982. - № 2. - с. 34-44.

4. Патент РФ № 2109683 від 27.04.1998.

5. Патент РФ 2132816 від 10.07.1999.

6. Патент України 78915 від 25.04.2007.

15

#### ФОРМУЛА КОРИСНОЇ МОДЕЛІ

20 Спосіб очистки полікристалічних алмазів розплавом NaNO<sub>3</sub> та NaOH шляхом взаємодії алмазографітової шихти у кількості 5-15 % з розплавами лугу та селітри у співвідношенні від 3:1 до 1:3, який **відрізняється** тим, що процес проводиться перші 30-60 хв. при 220-300 °С, після чого температура протягом 20-30 хв. поступово підвищується до 450-600 °С.

---

Комп'ютерна верстка А. Крижанівський

---

Державна служба інтелектуальної власності України, вул. Василя Липківського, 45, м. Київ, МСП, 03680, Україна

---

ДП "Український інститут інтелектуальної власності", вул. Глазунова, 1, м. Київ – 42, 01601