



NUMERO DE PUBLICATION : 1004218A3

NUMERO DE DEPOT : 9001166

Classif. Internat.: B01J C30B

MINISTERE DES AFFAIRES ECONOMIQUES

Date de délivrance : 13 Octobre 1992

Le Ministre des Affaires Economiques,

Vu la Convention de Paris du 20 Mars 1883 pour la Protection de la propriété industrielle;

Vu la loi du 28 Mars 1984 sur les brevets d' invention, notamment l' article 22;

Vu l' arrêté royal du 2 Décembre 1986 relatif à la demande, à la délivrance et au maintien en vigueur des brevets d' invention, notamment l' article 28;

Vu le procès verbal dressé le 07 Décembre 1990 à 14h25
à l' Office de la Propriété Industrielle

ARRETE :

ARTICLE 1.- Il est délivré à : GENERAL ELECTRIC COMPANY
One River Road, SCHENECTADY, N.Y.(ETATS-UNIS D'AMERIQUE)

représenté(e)(s) par : DE PALMENAER Roger, BUREAU VANDER HAEGHEN, Rue Colonel Bourg
108A,- B 1040 BRUXELLES.

un brevet d' invention d' une durée de 20 ans, sous réserve du paiement des taxes annuelles, pour : DIAMANT A CRISTAL UNIQUE A CONDUCTIBILITE THERMIQUE TRES ELEVEE.

INVENTEUR(S) : Anthony Thomas Richard, Lynnwood Avenue 2142, Schenectady, N.Y. (US); Banholzer William Frank, Olde Coach Road 30, Glenville, N.Y. (US); Fleischer James Fulton, Woodside Drive 4, Scotia, N.Y. (US); Bray James William, Fairlawn Parkway 2011, Schenectady, N.Y. (US); Tiemann Jerome Johnson, Union Street 234, Schenectady, N.Y. (US); Bigio Laurence, Dean Street 841, Schenectady, N.Y. (US)

Priorité(s) 11.12.89 US USA 448469 11.06.90 US USA 536371

ARTICLE 2.- Ce brevet est délivré sans examen préalable de la brevetabilité de l' invention, sans garantie du mérite de l' invention ou de l' exactitude de la description de celle-ci et aux risques et périls du(des) demandeur(s).

Bruxelles, le 13 Octobre 1992
PAR DELEGATION SPECIALE :


WUYTS L.
Directeur

Diamant à cristal unique à conductibilité thermique
très élevée

La présente invention concerne la préparation d'un
5 diamant à cristal unique et à conductibilité thermique
extrêmement élevée.

Les spécialistes de la technique connaissent
parfaitement des substances du type des diamants à
conductibilité thermique élevée. Par exemple, le diamant
10 naturel du type IIA, qui se caractérise par une pureté
d'un degré très élevé, possède une conductibilité
thermique à 25°C (298°K) de l'ordre de 21 watts/cm.°K,
qui est la plus élevée de toute substance connue
antérieurement à la présente invention. D'autre part, sa
15 conductibilité électrique est faible au point d'être
négligeable.

Ces propriétés font du diamant un excellent
matériau pour évacuer la chaleur d'objets ou d'ensembles
ou unités qui en engendrent. On peut l'utiliser à titre
20 de puits thermique ou à titre de conducteur/diffuseur
destiné à conduire de la chaleur provenant d'une unité
ou d'un objet qui engendre de la chaleur vers un puits
thermique d'une certaine autre matière.

Divers domaines existent où il est nécessaire de
25 recourir à l'emploi de conducteurs de chaleur à
conductibilité thermique très élevée. On peut en citer
un exemple dans les stations répétitrices pour réseaux à
fibres optiques. Les signaux sont transmis par de la
lumière de laser sur les fibres de réseaux de ce genre
30 pour de très grandes distances. Etant donné que ces
signaux voient leur intensité sensiblement décroître sur
plusieurs kilomètres, il est nécessaire de construire ce
que l'on appelle des "stations répétitrices" à
intervalles le long du réseau, aux fins d'augmenter
35 l'intensité de la lumière transmise le long du réseau.
Dans une station répétitrice typique de ce type, on

utilise un photodétecteur pour convertir le signal affaibli transmis par les fibres optiques en un signal électrique, qui est ensuite amplifié, reconverti en un signal lumineux par une diode émettrice de lumière et
5 transmis, à son tour, le long du segment suivant du réseau. En vue de minimiser le nombre nécessaire de stations répétitrices, une amplification optimale du signal dans n'importe quelle station est souhaitable. Cependant, la quantité d'énergie radiante de n'importe
10 quel type électriquement engendrée est proportionnelle à la puissance quatrième du courant utilisé. Cependant qu'une partie d'une telle énergie radiante se présente sous la forme de lumière, le reste de cette énergie est perdu sous forme de chaleur. Dans toute station
15 individuelle, s'engendrent par conséquent d'importantes quantités de chaleur, exigeant des conducteurs de chaleur efficaces pour conserver la station répétitrice en état de fonctionnement.

L'utilisation d'un diamant du type IIA naturel à
20 titre de conducteur de chaleur ou conducteur thermique dans ces domaines n'a pas encore été abandonné en dépit de son coût très élevé, étant donné que les unités ou ensembles conducteurs de chaleur qui opèrent sont très petits, ayant typiquement environ 1 mm d'un côté.
25 Lorsque des éléments conducteurs de chaleur de plus grandes dimensions sont nécessaires, des considérations à accorder aux dépenses à consentir deviennent importantes et l'utilisation du diamant naturel peut en conséquence être exclue. Le diamant synthétique, que
30 l'on produit de manière classique sous pression élevée, de qualité gem est d'un coût inférieur à celui du diamant naturel. Cependant, le diamant synthétique de ce type possédant une conductibilité thermique élevée ne peut pas être produit directement de manière efficace au
35 départ de graphite, par ce qu'une importante contraction

de volume s'opère au cours de la conversion et introduit des imperfections dans la structure cristalline. Pour leur plus grande part, les diamants fabriqués selon des procédés de dépôt en phase vapeur chimique à basse
5 pression que l'on appellera quelquefois ("DVC") ne sont pas des diamants à cristaux uniques et possèdent des conductibilités thermiques sensiblement plus faibles, typiquement de l'ordre de 12 watts/cm.^{°K} à environ 300°K (que l'on appellera quelquefois "conductibilité à la
10 température ambiante" dans la suite du présent mémoire).

Dans le brevet U.S. 3,895,313, on a décrit diverses matières du type diamant, que l'on y prétend posséder des conductibilités thermiques très élevées et qui y sont dites également être intéressantes à titre
15 d'éléments optiques pour des faisceaux laser de puissance très élevée. De manière plus particulière, il y est mentionné que le diamant de synthèse que l'on a fait croître à partir de carbone-12 ou de carbone-13, isotopiquement pur, serait utile en la matière, des
20 valeurs de la conductibilité à température ambiante fluctuant de 10-20 watts/cm.^{°K} étant mentionnées. Ceci représente, bien évidemment, l'ordre de grandeur de la valeur de la conductibilité du diamant naturel du type IIA et également celle du diamant produit par dépôt en
25 phase vapeur chimique. On y suggère également qu'à la température de 70°K (-203°C), inférieure à la température de l'azote liquide, on peut obtenir une conductibilité thermique supérieure à 200 watts/cm.^{°K}, peut être dans du diamant qui possède une pureté
30 isotopique élevée et des "propriétés appropriées qui se rapprochent étroitement des limites prévues par la théorie de l'état solide parfait" (c'est-à-dire sous la forme de cristal unique). Cependant, on n'y cite aucun procédé de préparation d'un diamant de ce genre et,
35 l'état de la technique n'a pas permis jusqu'à présent

d'en mettre à la disposition du public.

La présente invention a par conséquent pour objet un procédé de fabrication d'un diamant à cristal unique à puretés isotopique et chimique extrêmement élevées. La
5 matière première devant servir à l'obtention d'un diamant de ce genre est, elle-même, du diamant, ce qui élimine la contraction volumique rencontrée lors de la conversion sous pression élevée du graphite en diamant. La conductibilité thermique du diamant ainsi obtenu
10 s'est révélée être supérieure à celle de n'importe quelle autre substance actuellement connue, y compris le diamant naturel du type IIA, et également supérieure aux valeurs mentionnées dans le brevet U.S. 3,895,313. Par conséquent, il convient éminamment bien à l'emploi à
15 titre de conducteur de chaleur et également dans de nombreux autres domaines.

Selon l'une de ces caractéristiques, la présente invention a pour objet un procédé de fabrication d'un
20 diamant à cristal unique de pureté isotopique élevée, caractérisé en ce qu'il comprend les étapes consistant à :

(A) préparer un diamant constitué de carbone-12 ou de carbone-13 isotopiquement pur et

25 (B) convertir ce diamant en un diamant à cristal unique par diffusion sous pression élevée à travers une matière solvante-catalyseur métallique vers une région contenant un cristal semence de diamant.

30 Une caractéristique essentielle du procédé conforme à la présente invention réside dans l'utilisation de carbone-12 ou de carbone-13 isotopiquement pur. Comme on l'explique dans la suite du présent mémoire, on a constaté que l'élévation de la conductibilité thermique
35 provenant de l'emploi de carbone chimiquement et

isotopiquement pur était fortement supérieure à celle à laquelle on eût pu s'attendre sur base de considérations théoriques. Dans l'ensemble, la pureté isotopique du carbone doit être d'au moins 99,2% en poids; cela revient à dire que l'autre isotope doit être présent en une proportion maximale de 8 parties pour 1000. On préfère une pureté isotopique d'au moins 99,9% en poids. Le carbone doit également posséder un haut degré de pureté chimique.

On peut utiliser divers procédés au cours de l'étape A pour la fabrication du diamant sous forme isotopiquement pure. Par exemple, on peut séparer un composé de carbone gazeux, comme le monoxyde de carbone, en espèces du type carbone-12 et carbone-13 par des différences de diffusibilité et opérer ensuite la conversion en carbone solide par des artifices bien connus des spécialistes, comme la combustion en flamme réductrice dans le cas du monoxyde de carbone. Le carbone ainsi obtenu peut alors être converti en diamant dans des conditions classiques, comprenant le recours à une température élevée et une pression élevée ou à des conditions de DVC.

On peut encore utiliser d'autres procédés, y compris la formation par choc et des procédés de DVC dans des conditions qui engendrent un mélange de diamant et de graphite. Dans les procédés de ce dernier type, l'espèce carbone-13 se concentrera dans la phase diamant et l'espèce carbone-12 se concentrera dans la phase graphite. D'autres précurseurs de diamants que l'on peut utiliser sous forme enrichie, comprennent le graphite pyrolytique, le carbone amorphe ou vitreux, des polymères et des hydrocarbures liquides.

On constate habituellement que des procédés classiques de formation de diamant par DVC sont les plus commodes pour la fabrication d'un diamant isotopiquement

pur. Conformément à ces procédés, on dépose une couche de diamant sur au moins un support. On peut utiliser n'importe quelle matière de support convenant au dépôt de diamant sur elle; à titre d'exemples de matières de ce genre, on peut citer le bore, le nitrure de bore, le platine, le graphite, le molybdène, le cuivre, le nitrure d'aluminium, l'argent, le fer, le nickel, le silicium, l'alumine et la silice, comme aussi leurs combinaisons. Des supports à base de molybdène métallique conviennent particulièrement bien sous de nombreuses conditions et sont fréquemment préférés.

Le dépôt en phase vapeur chimique de diamant sur un support est bien connu et il est inutile d'en répéter les détails ici. En bref, le procédé en question exige l'activation à haute énergie d'un mélange d'hydrogène et d'un hydrocarbure, typiquement le méthane, le gaz hydrocarboné étant ensuite converti en hydrogène atomique qui réagit sur l'hydrocarbure pour former le carbone élémentaire. Ce carbone se dépose ensuite sur le support sous la forme de diamant. On peut parvenir à l'activation par des moyens classiques impliquant une activation à haute énergie qui engendre de l'hydrogène atomique au départ d'hydrogène moléculaire; les moyens de ce genre comprennent des moyens thermiques, faisant typiquement intervenir des filaments chauffés, des moyens à flammes, des moyens de décharge en courant continu et des moyens de radiation, impliquant des micro-ondes, ou un rayonnement de fréquence radio et analogues.

On préfère fréquemment des procédés thermiques et, plus particulièrement, à filaments, utilisant une ou plusieurs unités chauffantes à résistances, y compris des filaments ou des fils chauffés, aux fins de la présente invention. Conformément à ces procédés, les filaments sont typiquement en rhénium, molybdène,

tantale et tungstène, métalliques; en raison de son coût relativement faible et de son caractère particulièrement convenable, on préfère fréquemment le tungstène. Les diamètres de filaments d'environ 0,2 à 1,0 mm sont typiques, le diamètre fréquemment préféré atteignant environ 0,8 mm. Les distances des filaments au(x) support(s) se situent généralement de 5 à 10 mm.

On chauffe typiquement les filaments en question à des températures atteignant au moins 2000°C et la température optimale du support fluctue de 900 à 1000°C. On maintient la pression qui règne dans le récipient de dépôt jusqu'à environ 760 mm de Hg, cette pression atteignant typiquement une valeur de l'ordre de 10 mm de Hg. Le mélange hydrogène-hydrocarbure contient, en général, l'hydrocarbure en une quantité allant jusqu'à environ 2% en volume, sur base des gaz totaux. Pour une description de procédés de DVC illustratifs relatifs à la fabrication de diamant, il faut se référer aux demandes de brevet copendantes et appartenant à la même demanderesse n° 07/389,210 et 07/389,212 des E.U.A.

Lorsqu'on l'utilise, on emploie un hydrocarbure isotopiquement pur dans le procédé de DVC. Afin d'éviter la contamination, il est essentiel d'utiliser un équipement qui ne contient pas de carbone naturel à titre d'impureté. A cette fin, la chambre de DVC doit être réalisée en matériaux sensiblement incapables de dissoudre du carbone. Des matériaux typiques de ce genre sont le quartz et le cuivre.

Parmi le carbone-12 et le carbone-13, on préfère habituellement le carbone-12 pour diverses raisons. En premier lieu, le carbone-12 est présent dans la nature en proportions bien supérieures au carbone-13, ce dernier se présentant de manière typique en proportions non supérieures à environ 1% en poids; par conséquent, l'utilisation du carbone-12 entraîne des dépenses

minimales. En second lieu, la conductibilité thermique est inversement proportionnelle au carré du nombre de masse de l'isotope et on peut par conséquent prévoir que le diamant préparé au départ du carbone-12 aura une conductibilité thermique d'environ 17% supérieure à celui préparé à partir de carbone-13. Cependant, pour certaines applications, on préfère le carbone-13 et la portée de la présente invention s'étend tant à sa fabrication qu'à son utilisation.

10 L'épaisseur de la couche de diamant déposée par DVC sur le support n'est pas critique. Dans l'ensemble, il est commode de déposer au moins autant de diamant qu'il est nécessaire à la production d'un cristal unique du calibre voulu. Bien évidemment, la production d'une plus
15 importante quantité de diamant par DVC dans le but de fabriquer plusieurs cristaux est également envisagée.

Il est possible de convertir directement le produit du procédé par DVC en diamant de haute conductibilité thermique par l'intermédiaire d'une pression élevée, comme on le décrira dans la suite du présent mémoire, en utilisant ce produit sous la forme d'une tablette, d'une feuille ou de morceaux brisés. Cependant, le procédé conforme à l'invention s'effectue de la manière la plus efficiente lorsque l'on procède en premier lieu à une
20 réduction du diamant isotopiquement pur en une poudre ou en petits fragments.

On peut réaliser cette réduction par des moyens bien connus des spécialistes, comme un broyage et une pulvérisation. Le calibre des particules du produit n'est pas critique pour autant qu'il y ait eu une
30 fragmentation suffisante, la forme connue dans la technique sous l'appellation de "diamant en grenaille" convient tout-à-fait.

L'étape B, à savoir la production du diamant à
35 cristal unique, est classique, à l'exception que l'on

utilise, à titre de matière première, le diamant isotopiquement pur produit au stade ou à l'étape A. On parvient à deux choses en utilisant du diamant plutôt que du graphite ou quelque autre variété allotropique de carbone comme matière première : on peut utiliser une matière isotopiquement pure et aisément accessible et la contraction volumique rencontrée au cours de la conversion du graphite et d'autres variétés allotropiques par rapport au diamant est évitée, permettant ainsi la production d'un cristal unique de structure régulière et de haute qualité.

Les spécialistes de la technique connaissent parfaitement le procédé de production de diamant en cristal unique sous pression élevée et on présume qu'une description détaillée de ce procédé n'est pas nécessaire. On peut se référer, à cet égard, aux ouvrages suivants : Encyclopedia of Physical Science and Technology vol. 6, p. 492-506 (Academic Press, Inc., 1987); Strong, The Physics Teacher, January 195, p. 7-13; et brevets U.S. 4,073,380 et 4,082,185, pour en avoir des descriptions générales. Le procédé implique généralement la diffusion du carbone utilisé comme matière servant de source à travers un bain liquide d'une substance solvante-catalyseur métallique sous des pressions de l'ordre de 50.000 à 60.000 atmosphères et à des températures qui varient d'environ 1300 à 1500°C. On maintient de préférence un gradient de température négatif, typiquement d'environ 50°C, entre la matière à convertir et la région de dépôt qui contient une semence de diamant sur laquelle la croissance cristalline peut s'amorcer.

Les spécialistes de la technique connaissent des matières solvantes-catalyseur intéressantes pour l'étape B. Elle comprennent, par exemple le fer; des mélanges du fer et du nickel, de l'aluminium, du nickel et du

cobalt, du nickel et de l'aluminium et du nickel, du cobalt et de l'aluminium et des mélanges de nickel et d'aluminium. On préfère fréquemment des mélanges fer-aluminium pour la production du diamant à cristal unique, une matière constituée de 95% (en poids) de fer et de 5% d'aluminium étant tout particulièrement avantageuse aux fins de la présente invention.

Après la préparation du diamant à cristal unique par mise en oeuvre du procédé conforme à l'invention, il est fréquemment préférable d'éliminer la fraction attribuable au cristal semence par polissage. Ceci est tout particulièrement vrai lorsque le cristal semence ou d'ensemencement n'est pas isotopiquement pur.

Des études effectuées sur du diamant à cristal unique préparé conformément à la présente invention et possédant divers degrés de pureté isotopique ont montré qu'à des niveaux de pureté du carbone-12 de 99,2%, 99,5% et 99,9%, en poids, les conductibilités à la température ambiante étaient respectivement de 10%, 25% et 40% supérieures à celles du diamant du type IIA naturel. Aux températures inférieures, on peut prévoir des différences mêmes supérieures encore de conductibilité thermique. Ces conductibilités thermiques sont supérieures à celles de n'importe quelle substance antérieurement connue. Le diamant à cristal unique de ce type constitue une autre caractéristique de la présente invention, tout comme le diamant préparé par mise en oeuvre du procédé décrit dans le présent mémoire.

On ne comprend pas totalement les raisons de la conductibilité thermique extrêmement élevée du diamant à cristal unique selon l'invention. Cependant, on présume que le phénomène est principalement une fonction du trajet moyen libre des phonons (c'est-à-dire les modes de vibration du réseau) dans les cristaux de diamant. La conductibilité thermique est directement proportionnelle

à la chaleur spécifique, à la vitesse du son et au trajet moyen libre des phonons du cristal et les effets de l'isotope sur la chaleur spécifique et la vitesse du son sont négligeables.

5 Selon un calcul simplifié, l'inverse du trajet libre des phonons peut être considéré comme égal aux sommes des inverses des trajets moyens libres attribuables à la dispersion phonon-phonon et aux effets de l'isotope. On a calculé que le trajet moyen libre
10 relatif à l'isotope était de 34.000 Angströms et que le trajet relatif à la dispersion des phonons était de 1900 Angströms; par conséquent, l'effet de l'isotope compterait pour une diminution du trajet moyen libre de l'ordre de seulement environ 5,2%. Une raison possible
15 de l'effet de l'isotope sensiblement supérieur observé sur la conductibilité thermique réside dans le fait que, contrairement à la théorie, la constitution isotopique du diamant exerce un effet direct sur le trajet moyen libre attribuable à la dispersion phonon-phonon. Cet
20 effet n'a apparemment pas été reconnu antérieurement.

 En raison de la valeur de la conductibilité thermique élevée précitée et la conductibilité électrique sensiblement inexistante, le diamant à cristal unique isotopiquement pur conforme à la présente
25 invention est particulièrement intéressant à titre de conducteur d'évacuation de chaleur à partir de dispositifs électroniques et de sources engendrant de la chaleur similaires. Les articles comprenant une source de ce genre en contact avec le diamant en question sont
30 des conducteurs thermiques et constituent une autre caractéristique de l'invention.

 Une autre caractéristique de l'invention est formée par des articles abrasifs comprenant le diamant précité. On peut prévoir que des articles de ce genre possèdent
35 une durée de vie extraordinairement longue en raison de

leur aptitude à dissiper la chaleur de friction engendrée au cours de leur emploi. Des domaines typiques d'application comprennent les abrasifs de décapage, des diamants compactés, des filières d'étirage de fils, des
5 lames de scies, des instruments d'écriture, des mèches de perçage, des instruments d'aiguisage d'outils et des outils de polissage d'articles optiques, des pierres et des pierres précieuses comprenant des diamants et des articles qui en sont réalisés.

10 Une autre caractéristique de l'invention est constituée par des articles de filtration de la lumière, comprenant le diamant précité avec un trou du type trou d'épingle. Ils sont intéressants, par exemple, comme filtres spatiaux pour des faisceaux laser et
15 analogues. Les articles de ce type fabriqués à partir du diamant naturel sont sujets à l'endommagement provoqué par les rayonnements, probablement de nature thermique. On peut espérer que la conductibilité thermique sensiblement supérieure du diamant selon l'invention
20 minimise fortement l'endommagement de cette nature.

On illustrera à présent l'invention par un exemple conformément auquel on a d'abord déposé une couche de diamant par DVC sur un support en molybdène, dans une chambre construite de quartz et de cuivre, ni l'un ni
25 l'autre de cet élément ne dissolvant d'importantes quantités de carbone. On a disposé le support verticalement dans un plan parallèle et à une distance de 8 à 9 mm du plan d'un filament de tungstène d'un diamètre d'environ 0,8 mm. On a fait le vide dans le
30 récipient jusqu'à une pression d'environ 10 mm de Hg, on a chauffé le filament jusqu'à environ 2000°C par le passage d'un courant électrique et on a fait passer un mélange de 98,5% (en volume) d'hydrogène et de 1,5% de méthane dans le récipient. Le méthane mis en oeuvre
35 était sensiblement dépourvu d'impuretés et 99,9% de ce

composé contenaient l'isotope constitué de carbone-12. Après le retrait et l'analyse spectroscopique de masse du diamant ainsi obtenu, on a constaté que 99,91% du carbone qui y étaient présents étaient constitués de
5 carbone-12.

On a mesuré la conductibilité thermique du diamant obtenu par DVC isotopiquement pur par détection mirage des ondes thermiques engendrées par un faisceau d'ions argon modulé frappant les cristaux de diamant,
10 conformément à un procédé classique. La conductibilité à la température ambiante se révéla être d'environ 12 watts/cm.°K. Un échantillon témoin de diamant obtenu par DVC, similaire mais préparé à partir de méthane possédant la distribution isotopique se présentant à
15 l'état naturel (98,96% de C-12, 1,04% de C-13), possédait sensiblement la même conductibilité.

On a broyé le diamant obtenu par DVC isotopiquement pur et on l'a transformé en poudre et on l'a employé comme source de carbone pour la croissance d'un diamant
20 à cristal unique, sous pression élevée et dans des conditions de température élevée. De manière spécifique, on a utilisé un appareil à courroie classique, à 52.000 atmosphères et 1400°C, utilisant un mélange solvant-catalyseur de 95% (en poids) de fer et 5% d'aluminium.
25 On a utilisé une petite semence de diamant à cristal unique (0,005 carat) de distribution isotopique normale pour amorcer la croissance et on a maintenu un gradient de température négatif d'environ 50°C entre le diamant obtenu par DVC et le cristal servant de semence. On a
30 poursuivi le procédé jusqu'à la production d'un cristal unique de 0,95 carat. L'analyse du produit montra que 99,93% du carbone qu'il contenait étaient formés de l'isotope C-12.

On a poli le diamant à l'aide d'une polisseuse de
35 diamant classique pour éliminer le cristal semence et on

a comparé sa conductibilité à la température ambiante à celle d'autres matières, y compris un diamant à cristal unique témoin préparé à partir de diamant obtenu par DVC avec une distribution isotopique normale. Les résultats
 5 obtenus furent les suivants, toutes les valeurs étant données en watts/cm.^{°K} :

	Diamant C-12 isotopiquement pur (de l'invention)	31,5
	Témoin	21,18
10	Diamant IIA du type naturel	21,2
	Diamant obtenu par DVC	12,0
	Nitrure de bore cubique	7,6
	Carbure de silicium	4,9
	Cuivre	4,0
15	Oxyde de béryllium	3,7
	Phosphure de bore	3,6
	Nitrure d'aluminium	3,2
	Silicium	1,6
	Oxyde d'aluminium	0,2

20

Par conséquent, la conductibilité à la température ambiante du diamant de l'invention est de 48,7% supérieure à celle du témoin. Elle est également beaucoup plus élevée que la conductibilité à la
 25 température ambiante de n'importe quel autre diamant ou n'importe quelle autre matière non constituée de diamant et dont a mesuré la conductibilité à la température ambiante.

A 70°K, en-dessous du point d'ébullition de l'azote
 30 liquide, on peut théoriquement prévoir que le diamant selon l'invention possède une conductibilité d'environ 2675 watts/cm.^{°K}, soit 13 fois la valeur minimale prévue dans le brevet U.S. 3,895,313 susmentionné.

R e v e n d i c a t i o n s

1. Procédé de fabrication d'un diamant à cristal
unique de pureté isotopique élevée, caractérisé en ce
5 que :

(A) on prépare un diamant constitué de carbone-12
ou de carbone-13, isotopiquement pur et

(B) on convertit ce diamant en un diamant à cristal
10 unique par diffusion sous pression élevée à travers une
matière solvante-catalyseur métallique vers une région
contenant un cristal de diamant semence.

2. Procédé suivant la revendication 1, caractérisé en
15 ce que le carbone est le carbone-12.

3. Procédé suivant la revendication 2, caractérisé en
ce que l'on broie, c'est-à-dire réduit en fins grains,
le produit de l'étape A.

4. Procédé suivant la revendication 3, caractérisé en
20 ce que le carbone est d'une pureté isotopique d'au moins
99,2%.

5. Procédé suivant la revendication 4, caractérisé en
ce que l'on prépare le diamant de l'étape A par dépôt en
phase vapeur chimique.

25 6. Procédé suivant la revendication 5, caractérisé en
ce que l'équipement utilisé pour la mise en oeuvre de
l'étape A est réalisé en matières sensiblement
incapables de dissoudre du carbone.

7. Procédé suivant la revendication 4, caractérisé en
30 ce que le calibre des particules obtenu par le broyage
est celui de la grenaille de diamant.

8. Procédé suivant la revendication 7, caractérisé en
ce que l'on réalise l'étape A à une température du
filament d'au moins 2000°C, une température du support
35 de 900 à 1000°C et une pression d'environ 10 mm de Hg.

9. Procédé suivant la revendication 8, caractérisé en ce que les filaments sont en tungstène et le support est en molybdène.
10. Procédé suivant la revendication 6, caractérisé en ce que le carbone possède une pureté isotopique d'au moins 99,9%.
11. Procédé suivant la revendication 10, caractérisé en ce que la matière solvante-catalyseur utilisée au cours de l'étape B est un mélange de fer et d'aluminium.
12. Procédé suivant la revendication 11, caractérisé en ce que l'on maintient un gradient de température négatif au cours de l'étape B entre la matière à convertir et la région où s'effectue le dépôt.
13. Procédé suivant la revendication 12, caractérisé en ce que la matière solvante-catalyseur utilisée au cours de l'étape B est formée d'un mélange de 95% de fer et de 5% d'aluminium, en poids.
14. Procédé suivant la revendication 13, caractérisé en ce que le gradient de température est d'environ 50°C.
15. Procédé suivant la revendication 12, caractérisé en ce que la pression au cours de l'étape B varie de 50.000 à 60.000 atmosphères et la température au cours de cette étape fluctue d'environ 1300 à 1500°C.
16. Procédé suivant la revendication 15, caractérisé en ce que le cristal d'ensemencement ou cristal semence est un diamant à cristal unique de distribution isotopique normale.
17. Procédé suivant la revendication 16, caractérisé en ce que l'on élimine la partie du diamant produit attribuable au cristal d'ensemencement par polissage.
18. Diamant à cristal unique, constitué d'au moins 99,2% en poids de carbone-12 ou de carbone-13, isotopiquement pur, le diamant en question possédant une conductibilité thermique à 300°K d'au moins 10% supérieure à celle du diamant du type IIA naturel.

19. Diamant suivant la revendication 18, caractérisé en ce qu'il se compose de carbone-12.
20. Article comprenant une source engendrant de la chaleur, en contact avec le diamant suivant la revendication 18, servant de conducteur thermique.
21. Article abrasif comprenant le diamant suivant la revendication 18.
22. Article de filtration de la lumière comprenant le diamant selon la revendication 18 comportant un trou du type trou d'épingle.
23. Diamant à cristal unique constitué d'au moins 99,5% en poids de carbone-12 ou de carbone-13, isotopiquement pur, le diamant en question possédant une conductibilité thermique à 300°K d'au moins 25% supérieure à celle du diamant du type IIA naturel.
24. Diamant à cristal unique constitué d'au moins 99,9% en poids de carbone-12 ou de carbone-13, isotopiquement pur, le diamant en question possédant une conductibilité thermique à 300°K d'au moins 40% supérieure à celle du diamant du type IIA naturel.
25. Diamant à cristal unique préparé par mise en oeuvre du procédé suivant la revendication 1.
26. Diamant à cristal unique préparé par mise en oeuvre du procédé suivant la revendication 2.
27. Diamant à cristal unique préparé par mise en oeuvre du procédé suivant la revendication 4.
28. Diamant à cristal unique préparé par mise en oeuvre du procédé suivant la revendication 10.
29. Diamant à cristal unique préparé par mise en oeuvre du procédé suivant la revendication 17.



Office européen
des brevets

RAPPORT DE RECHERCHE

établi en vertu de l'article 21 § 1 et 2
de la loi belge sur les brevets d'invention
du 28 mars 1984

Numero de la demande
nationale

BE 9001166
BO 2651

DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS					
Catégorie	Citation du document avec indication, en cas de besoin, des parties pertinentes	Revendication concernée	CLASSEMENT DE LA DEMANDE (Int. Cl.5)		
A	APPLIED PHYSICS LETTERS. vol. 52, no. 6, 8 Février 1988, NEW YORK US pages 451 - 452; B.SINGH ET AL.: 'Effects of filament and reactor wall materials in low-pressure chemical vapor deposition synthesis of diamond' * abstract * * page 451, colonne 1, alinéa 3 - colonne 2, alinéa 2 * * figure 1 * ---	1, 5, 6, 8, 9	B01J3/06 C30B25/02 C30B29/04		
A	EP-A-0 206 820 (DE BEERS INDUSTRIAL DIAMOND DIVISION (PROPRIETARY) LTD.) * résumé * * colonne 1, ligne 25 - ligne 29 * * colonne 1, ligne 48 - colonne 2, ligne 45 * ---	1, 2, 4, 11, 15			
A	US-A-3 895 313 (ENTROPY CONVERSION) * résumé * * colonne 2, ligne 9 - ligne 37 * * colonne 3, ligne 36 - ligne 55 * * colonne 4, ligne 38 - ligne 48 * * revendications 1-3 * -----	20	DOMAINES TECHNIQUES RECHERCHES (Int. Cl.5) B01J C23C C30B		
LA HAYE		Date d'achèvement de la recherche 14 FEVRIER 1992	Examineur SIEM T. D.		
<table border="0"><tr><td>CATEGORIE DES DOCUMENTS CITES X : particulièrement pertinent à lui seul Y : particulièrement pertinent en combinaison avec un autre document de la même catégorie A : arrière-plan technologique O : divulgation non-écrite P : document intercalaire</td><td>T : théorie ou principe à la base de l'invention E : document de brevet antérieur, mais publié à la date de dépôt ou après cette date D : cité dans la demande L : cité pour d'autres raisons & : membre de la même famille, document correspondant</td></tr></table>				CATEGORIE DES DOCUMENTS CITES X : particulièrement pertinent à lui seul Y : particulièrement pertinent en combinaison avec un autre document de la même catégorie A : arrière-plan technologique O : divulgation non-écrite P : document intercalaire	T : théorie ou principe à la base de l'invention E : document de brevet antérieur, mais publié à la date de dépôt ou après cette date D : cité dans la demande L : cité pour d'autres raisons & : membre de la même famille, document correspondant
CATEGORIE DES DOCUMENTS CITES X : particulièrement pertinent à lui seul Y : particulièrement pertinent en combinaison avec un autre document de la même catégorie A : arrière-plan technologique O : divulgation non-écrite P : document intercalaire	T : théorie ou principe à la base de l'invention E : document de brevet antérieur, mais publié à la date de dépôt ou après cette date D : cité dans la demande L : cité pour d'autres raisons & : membre de la même famille, document correspondant				

ANNEXE AU RAPPORT DE RECHERCHE
RELATIF A LA DEMANDE DE BREVET BELGE NO.

DE 9001166
 BO 2651

La présente annexe indique les membres de la famille de brevets relatifs aux documents brevets cités dans le rapport de recherche visé ci-dessus.

Lesdits membres sont contenus au fichier informatique de l'Office européen des brevets à la date du

Les renseignements fournis sont donnés à titre indicatif et n'engagent pas la responsabilité de l'Office européen des brevets.

14/02/92

Document brevet cité au rapport de recherche	Date de publication	Membre(s) de la famille de brevet(s)	Date de publication
EP-A-0206820	30-12-86	JP-A- 62041708	23-02-87
US-A-3895313	15-07-75	DE-A- 2444456	20-03-75
		JP-A- 50078292	26-06-75
		SE-A- 7411696	18-03-75