

---

Octrooiraad



[10] A **Terinzagelegging** [11] **7600004**

Nederland

[19] NL

---

- [54] **Werkwijze voor identificeren van een diamant.**
- [51] Int.Cl<sup>2</sup>: G01N23/20.
- [71] **Aanvrager: De Beers Consolidated Mines Limited te Kimberley, Republiek van Zuid-Afrika.**
- [74] **Gem.: Ir. C.M.R. Davidson c.s.  
Octroobureau Vriesendorp & Gaade  
Dr. Kuiperstraat 6  
's-Gravenhage.**

- 
- [21] **Aanvraag Nr. 7600004.**
- [22] **Ingediend 2 januari 1976.**
- [32] **Voorrang vanaf 3 januari 1975.**
- [33] **Land van voorrang: Groot-Brittannië (GB).**
- [31] **Nummer van de voorrangsaanvraag: 328/75.**
- [23] --
- [61] --
- [62] --

- 
- [43] **Ter inzage gelegd 6 juli 1976.**

De aan dit blad gehechte afdruk van de beschrijving met conclusie(s) en eventuele tekening(en) bevat afwijkingen ten opzichte van de oorspronkelijk ingediende stukken; deze laatste kunnen bij de Octrooiraad op verzoek worden ingezien.

---

DE BEERS CONSOLIDATED MINES LIMITED, te Kimberley, Republiek Zuid-Afrika

"Werkwijze voor identificeren van een diamant".

De uitvinding heeft betrekking op de identificatie van diamanten, in het bijzonder diamanten van edelsteenkwaliteit.

Diamanten van edelsteenkwaliteit zijn natuurlijk reeds lange jaren van grote waarde, zowel om decoratieve redenen als uit oogpunt van investering. De waarde van dergelijke diamanten is voortdurend toegenomen en deze zeer sterke waardeverhoging heeft grote moeilijkheden veroorzaakt voor de politieautoriteiten en verzekeringsmaatschappijen. Als een diamant van edelsteenkwaliteit is verloren of gestolen kan het voor de politieautoriteiten moeilijk zijn een teruggevonden diamant te identificeren als die, welke was gestolen of verloren, met name aangezien de aard van de diamant oppervlakkig kan worden veranderd door herslijping, hersplijting en bestraling.

De identificatie van een verloren diamant is in het verleden uitgevoerd door een "vingerafdruk" samen te stellen van de gemakkelijk te onderkennen aspecten van de diamant. Dergelijke aspecten zijn bijvoorbeeld het karaatgewicht, de splijting, de helderheid en de kleur van de diamant; andere zijn de resultaten van verschillende fysische, aan de diamant uitgevoerde proeven. Tot deze laatste aspecten behoren de meting van onregelmatigheden aan het oppervlak onder gebruikmaking van bijvoorbeeld het differentiële interferentiecontrast van Nomarski, of methoden voor het meten van over de massa gemiddelde eigenschappen als fluorescentie, magnetische en optische absorptie en elektronenspinresonantiemetingen. Een dergelijke vingerafdruk van een diamant zou weliswaar constant genoeg kunnen zijn voor het doen identificeren van een bepaalde teruggevonden diamant door de autoriteiten, maar dit kan slechts geschieden als de aard van de diamant niet is gewijzigd als bovenbedoeld. Verder kan men deze vingerafdrukmethode in het algemeen slechts uitvoeren bij gespleten diamanten, want zij is niet geschikt voor ruwe diamanten. De veiligheidsmaatregelen in diamantmijnen en in

7600004

diamantsplijterijen vergen echter, dat men ten allen tijden een controle kan uitvoeren aan de ruwe diamanten, waarna de gedeeltelijk gespleten en volledig gespleten diamanten door de mijn of splijterij gaan. Men beschikt echter tot op heden niet over een methode voor het identificeren van een bepaalde gespleten diamant aan de ruwe steen, waaruit deze is gespleten, zodat er duidelijk behoefte aan een dergelijke methode bestaat.

Er werd nu gevonden, dat toepassing van topografie een vingerafdruk van een diamant kan leveren, zowel in ruwe als in gespleten staat, welke vingerafdruk niet verandert als de diamant herspleten, herslepen en/of zacht bestraald wordt. De vingerafdruk verandert slechts, als de kenmerkende kristallijne aard van de diamant diepgaand wordt veranderd door bijvoorbeeld omzetting in amorfe kool. Topografie is een methode, waarbij punt voor punt door het gehele volume heen bepaalde eigenschappen van een monster worden uitgebeeld. Aldus is topografisch onderzoek van bijzondere betekenis als de inhomogeniteit van het monster van belang is. (Zie E.G. Lang, "Modern Diffraction and Imaging Techniques in Material Science", North-Holland Publishing Co., Amsterdam-London, 407 (1970).

De werkwijze van de uitvinding omvat het bepalen of een diamant dezelfde is als of anders is dan een bekende diamant door een of meer registraties te vervaardigen van inwendige fouten van de diamant onder gebruikmaking van röntgenstralingstopografie en de aldus vervaardigde registratie of registraties te vergelijken met een soortgelijke registratie of registraties, vervaardigd van de bekende diamant. De registratie of registraties worden bij voorkeur vervaardigd onder gebruikmaking van röntgenstralingsafbuiging onder de Bragghoek. Met de uitdrukking "Bragghoek" wordt de hoek bedoeld, die voldoet aan de vergelijking, die bekend is als de wet van Bragg:  $2d_{hkl} \sin \theta = n\lambda$ . In deze vergelijking is  $d_{hkl}$  de interplanaire ruimte tussen die kristalroostervlakken, wier oriëntatie in het kristalrooster wordt aangegeven door de index hkl, de hoek  $\theta$  is de hoek, die de röntgenbundel vormt met bovengenoemde vlakken, n is een geheel getal en  $\lambda$  is de golflengte van de betrokken röntgenstraling. Röntgenstralingsafbuigingsradiogrammen (ook bekend als röntgenstralingsafbuigingstopogrammen) genomen onder de Bragghoek vertonen karakteristieke patronen, die van zodanige aard zijn, dat het onwaarschijnlijk is, dat meer dan een diamant exact dezelfde

7600004

vingerafdruk heeft, vooral als men een reeks röntgenstralingsradio-grammen neemt in de verschillende vlakken maar met steeds dezelfde Braggreflectiehoek. De registratie of registraties kunnen röntgenstraling-afbuigings- of absorptietopogrammen zijn, maar zijn bij voorkeur af-  
5 buigingstopogrammen.

De uitdrukking "onder gebruikmaking van röntgenstralingsafbuiging onder de Bragghoek" wordt hier natuurlijk in algemene zin gebruikt. Als het monster enige kristalgebieden bevat, die kennelijk een misoriëntatie vertonen ten opzichte van andere gebieden in het  
10 kristal en de golflengten, die in de op het kristal invallende röntgenbundel tot een voldoende smal gebied beperkt zijn en er een voldoende kleine angulaire divergensie heerst in de op het monster invallende röntgenbundel, kunnen, bij een gegeven angulaire plaatsing van het kristal ten opzichte van de hoofdoriëntatie van de invallende röntgenbundel,  
15 sommige kristalgebieden goed voldoen aan de wet van Bragg, terwijl andere dit in het geheel niet doen. Een dergelijke misoriëntatie in het monster kan worden geregistreerd en kan eigenlijk worden beschouwd als onderdeel van de röntgentopografische registratie van inwendige fouten in de diamant. De gevoeligheid van contrast, de aard van het contrast (d.w.z. overmaat  
20 of gebrek aan afbuigingsintensiteit) en het contrastgebied, dat bij deze misoriëntaties hoort (en ook kleinere misoriëntaties als bijvoorbeeld gepaardgaan met individuele kristalroosterdislocaties) worden geregistreerd, afhankelijk van de gerichtheidsgraad en de golflengtespreiding van de op het monster invallende röntgenstraling. Aldus hangen de contrastverschijnselen in röntgentopogrammen er in het algemeen van af op  
25 de op het monster invallende röntgenstraling wordt gericht door sleuven of wordt gericht en/of gemonochromatiseerd door voorafgaande Braggreflectie door een zogenaamd "monochromator" kristal en ook of de oorsprong van de straling een gewone röntgenstralingsgenerator of een synchrotronbron is. Dergelijke technische variaties en bijzonderheden worden geacht  
30 begrepen te zijn onder de uitdrukkingen "gebruikmaking van röntgenstralingsafbuiging onder de Bragghoek" en "voldoen aan de wet van Bragg".

Bij de werkwijze van de uitvinding kan men gebruikmaken van de Braggreflectie van een, of meer dan een kristalrooster-  
35 vlakken, die verschillen in orientatie en/of interplanaire ruimte met behulp van projectie- en/of sectietopografie volgens een vooraf bepaalde

7600004

procedure, die is ontworpen ter verkrijging van een maximum informatie ten aanzien van de inwendige, onderscheidende aspecten van het kristal. Door gebruik te maken van deze röntgenstralingstopografie kan men onvolkomenheden in het kristalrooster identificeren, bijvoorbeeld kristalroosterdislocaties in de diamant, groei banden, stapelfouten en vertweelingen.

Uit de vergelijking van de wet van Bragg blijkt, dat, indien de röntgenstraling monochromatisch (of nagenoeg monochromatisch) is, men het kristal onder een zodanige hoek moet opstellen ten opzichte van de stralingsrichtingen, die in de invallende röntgenbundel aanwezig zijn, dat voor tenminste een kristalroostervlak (hkl) wordt voldaan aan de vergelijking van de wet van Bragg. In dit geval kan men de röntgentopogrammen in serie registreren. Indien de röntgenstraling anderszijds niet monochromatisch is, bijvoorbeeld de zogenaamde "witte straling" die door een röntgenbuis wordt uitgezonden op de door een synchrotron geproduceerde röntgenstralen, kan men tegelijkertijd onder elke angulaire plaatsing van het kristal ten opzichte van de invallende bundel een groep Braggreflecties registreren, elk afkomstig van een anders georiënteerd kristalroostervlak, als volgens de methode, beschreven door Guinier and Tennevin, Acta Crystallographica, 1949, 2, 133-138. Het is een kwestie van keuze, die sterk afhangt van de eigenschappen van de ter beschikking staande röntgenbron, of men Braggreflectie registreert in serie (onder gebruikmaking van de röntgenstraling van een gegeven golflengte) of tegelijkertijd in groepen als volgens bovengenoemde methode van Guinier and Tennevin. Als men laatstgenoemde methode gebruikt is het voordelig groepen reflecties te registreren als er een symmetrie-as parallel met de as van de invallende röntgenbundel georiënteerd is. Zo kan men bijvoorbeeld groepen reflecties registreren met voor elke groep een van de drie kubische symmetrie-assen parallel georiënteerd aan de bundels.

Als bovenaangegeven kan men een serie afbuigingsradiogrammen nemen onder gebruikmaking van kristallografisch equivalente reflectie. De eenvoudigste procedure bij gebruik van monochromatische straling is het selecteren van de drie kubusvlakken, waarbij men vier radiogrammen neemt in elk vlak en waarbij men tussen het nemen van elk radiogram het kristal  $90^\circ$  rond de verticaal draait onder verkrijging van een algeheel beeld van de steen.

7600004

Men kan het radiogram in permanente of semi-permanente vorm registreren onder gebruikmaking van de gewone methoden, bijvoorbeeld met röntgenpolaroidmethoden, röntgengevoelige fotografische emulsies, xerografische methoden en elektronische methoden. Dergelijke elektronische methoden omvatten elektronische beeldversterkers (met of 5 zonder daaraan gekoppeld televisietoestel) en plaatsgevoelige, met gas gevulde of in vaste toestand verkerende röntgenfotodetectoren (die enkelvoudig worden gebruikt of meervoudig worden gebruikt in een reeks). De registraties kunnen bijvoorbeeld de vorm van magnetische banden hebben. De röntgenstralingsbron (die gericht moet zijn) kan hetzij een gewone 10 röntgenbuis, hetzij een synchrotron zijn, welk synchrotron een bron is van sterk gerichte en sterk intensieve röntgenstraling.

Men kan door deze topografische methode onderscheid maken tussen synthetische en natuurlijke diamanten, meestal, 15 omdat de tegenwoordig verkrijgbare synthetische diamanten typen van inclusie vertonen, die bijvoorbeeld zijn te wijten aan metallieke verontreinigingen, die in natuurlijke diamanten niet aanwezig zijn.

Sommige diamanten, bijvoorbeeld ruwe diamanten, in het bijzonder die, die uit een alluviale bron aanwezig zijn, hebben 20 oppervlakte-beschadigingen en het is gewenst de oppervlaktebeschadigingen zoveel mogelijk te verwijderen alvorens de röntgentopografische registratie of registraties van de diamant te vervaardigen. Door verwijdering van oppervlaktebeschadigingen kan men de inwendige, onderscheidende aspecten van de diamant duidelijker en met meer contrast in de röntgentopogrammen vastleggen. Oppervlaktebeschadiging kan worden verwijderd 25 door etsing, bijvoorbeeld onder gebruikmaking van een gas bij geregelde temperatuur en druk, reactieve gassen in aanwezigheid van elektrische stromen, geroerde vloeistoffen en zeer snelle ionen en atomen.

Als een ruwe diamant van een bekleding is voorzien, kunnen een of meer röntgentopogrammen aangeven of de steen de 30 kosten en de moeite van het openen waard is.

Aangenomen wordt, dat verzekeringsmaatschappijen en politieautoriteiten een index kunnen opbouwen van röntgentopogrammen van bekende diamanten en een dergelijke index vormt onderdeel van de 35 uitvinding.

De index kan bijvoorbeeld bestaan uit een verkorte

7600004

weergifte, samenvatting of gecodeerde beschrijving van de configuratie van een of meer typen van inwendige fouten, als stapelfouten, tweelingen, slipbanden of kleinhoekige korrelgrenzen (misorientaties) en in het bijzonder, roosterdislocaties, groeihorizons en spanningsvelden, die  
 5 gepaardgaan met submicroscopische insluitels of precipitaten, als röntgen-topografisch is geregistreerd.

De bijgaande radiogrammen (figuren 1 en 2) tonen röntgenafbuigingsbeelden van een 1 karaat briljant diamant. Fig. 1 is een projectie topogram (Lang, Acta Crystallographica, 1959, 12, 249-250),  
 10 terwijl fig. 2, die ruwweg elliptisch van vorm is, een röntgensectie-topogram is (deze methode wordt besproken door Lang, Acta Metallurgica, 1957, 5, 358-364) om de doorsnijding door de briljant diamant ruwweg evenwijdig aan zijn breedtedoorsnede, evenwijdig aan de stapels, d.w.z. een doorsnede evenwijdig aan de gordel. Het sectietopogram toont een  
 15 zeer scherp detail en derhalve een grote mate van zeldzaamheid, maar vertegenwoordigt maar een doorsnede door het kristal. Het projectie-topogram weerspiegelt het hele volume van het kristal en is daarom minder scherp. Deze bepaalde diamant is uit oogpunt van kristalgroei tamelijk  
 20 pathologisch (maar heeft kennelijk een niet erg ongewone inwendige structuur). Aldus was het niet gemakkelijk een vingerafdruk te maken, aangezien deze diamant zoveel onvolkomenheden vertoont. Gemeend wordt echter, dat de beelden, plus mogelijk nog een paar meer beelden van dezelfde steen een ongeëvenaarde en ondubbelzinnige, betrouwbare vinger-  
 25 afdruk vormen, die niet kan worden veranderd door enige methode, die ook niet de steen zelf ruïneert.

Bij een voorbeeld van de uitvinding nam men röntgenafbuigingstopogrammen van drie ruwe diamanten, alle van edelsteen-  
 kwaliteit zonder zichtbare scheuren of barsten en zonder enige microscopische zichtbare identificerende eigenschappen van enigerlei aard.  
 30 Ter verkrijging van een redelijk volledige topografische afbuigingsregistratie van de ruwe stenen ten behoeve van "vingerafdrukken" en teneinde het aantal te nemen topogrammen tot een minimum te beperken, besliste men de reflectie te gebruiken van de vorm met de kleinste multipliciteit, namelijk de kubus  $\{100\}$  en projectietopogrammen te ver-  
 35 vaardigen onder gebruikmaking van elk onafhankelijk vlak van deze vorm, waarvan er drie zijn. De reflectie van de laagste orde van deze

7600004

vorm als wordt bepaald door de symmetrie van de ruimtengroep, waartoe  
 diamant behoort (namelijk  $O_h^7$ ) is van het type 400. Dientengevolge  
 gebruikte men elk van de vlakken (400), (040) en (004) op zijn beurt.  
 Aangezien men voorts niet kon voorstellen hoe de uiteindelijke "vinger-  
 5 afdruk" zou uitvallen, besloot men vier topogrammen te nemen onder ge-  
 bruikmaking van elk van de drie vlakken van  $\{400\}$ , waardoor men vier  
 verschillende aanzichten kreeg van elke steen met elke reflectie. De  
 definitieve registratie bestond aldus uit 12 diffractietopogrammen van  
 elke steen. Men gebruikte telkens  $MoK\alpha_1$ -straling volgens een standaard-  
 10 procedure voor elk topogram. Daarna werden de drie ruwe stenen gespleten  
 en geslepen tot briljanten, door welke behandeling hun afmeting en vorm  
 volkomen veranderden. Men nam röntgenafbuigingstopogrammen van de drie  
 gespleten briljanten en ondervond geen moeilijkheden bij het bij elkaar  
 vinden van de topogrammen van een bepaalde steen in ruwe en definitieve  
 15 toestand, waardoor men ondubbelzinnig kon vaststellen uit welke ruwe  
 steen elke bepaalde briljant was vervaardigd. Figuren 3 en 4 geven bij  
 wijze van toelichting, topogrammen, die van een der diamanten zijn ge-  
 nomen respectievelijk voor en na het slijten. Op de tekeningen zijn de-  
 zelfde getallen gebruikt voor het aanduiden van de gezamenlijke kenmerken,  
 20 waardoor het mogelijk was ondubbelzinnig de oorsprong te identificeren  
 van de gespleten en geslepen diamant.

Men kan de werkwijze van de uitvinding ook  
 gebruiken voor het nemen van "vingerafdrukken" van andere delestenen  
 als robijnen, smaragden en saffieren.

25

### C O N C L U S I E S

1. Werkwijze voor het bepalen of een diamant  
 dezelfde is als of anders is dan een bekende diamant, met het kenmerk,  
 dat men een of meer registraties vervaardigt van inwendige fouten van de  
 30 diamant onder gebruikmaking van röntgentopografie en de aldus verkregen  
 registratie of registraties vergelijkt met een soortgelijke regis-  
 tratie of registraties van de bekende diamant.

2. Werkwijze volgens conclusie 1, met het kenmerk,  
 dat men de registratie of registraties vervaardigt met röntgenafbuiging  
 35 onder de Bragghoek.

3. Werkwijze volgens conclusie 1, met het kenmerk,

7600004



dat men de registratie of registraties van het monster (of een geselecteerd gebied daarvan) vervaardigt door het monster ten opzichte van de orientaties van de röntgenstralen, die in de op het monster invalende röntgenbundel aanwezig zijn, zodanig georiënteerd, dat een fractie van het volume van het monster (of van het geselecteerde gebied) nagenoeg voldoet aan de voorwaarde van röntgenafbuiging onder de Bragghoek.

4. Werkwijze volgens conclusie 1, met het kenmerk, dat men de registratie of registraties van het monster (of een geselecteerd gebied daarvan) vervaardigt door het monster te bestralen met een röntgenbundel, waarvan de spectrale verdeling en de orientaties ten opzichte van het monster (of het geselecteerde gebied) zodanig zijn gekozen, dat een fractie van het monster (of van het geselecteerde gebied) volgens een bepaalde kleine hoek afwijkt van exacte voldoening aan de voorwaarde van röntgenafbuiging onder de Bragghoek.

5. Werkwijze volgens conclusie 1-4, met het kenmerk, dat men oppervlaktebeschadigingen van de diamant verwijdert alvorens een registratie of registraties te vervaardigen.

6. Werkwijze volgens conclusie 4, met het kenmerk, dat men de oppervlaktebeschadigingen verwijdert door etsing.

7. Werkwijze volgens een der voorgaande conclusies, met het kenmerk, dat de registratie of registraties röntgentopogrammen zijn.

8. Werkwijze volgens een der voorgaande conclusies, met het kenmerk, dat de bekende diamant een ongespleten diamant is.

9. Index van registratie van bekend diamant, vervaardigd door röntgentopografie en geschikt voor gebruik bij de werkwijze van een der conclusies 1-8.

10. Nieuwe werkwijze als beschreven in de beschrijving.

7600004

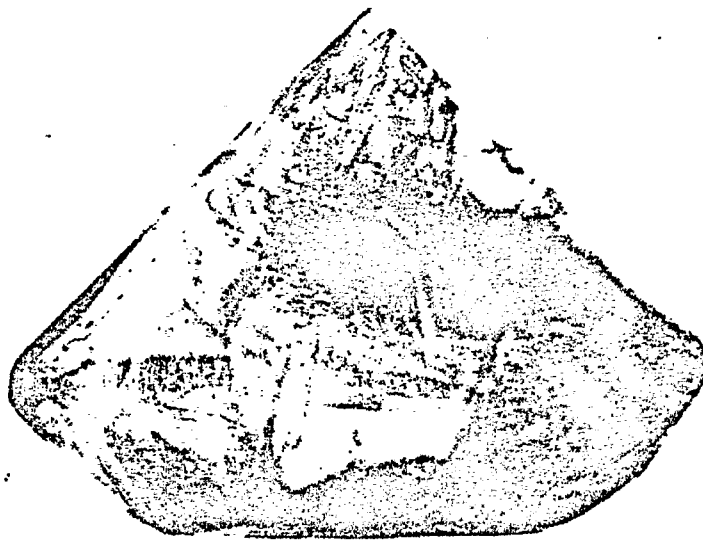


FIG.1



FIG.2

760.0004

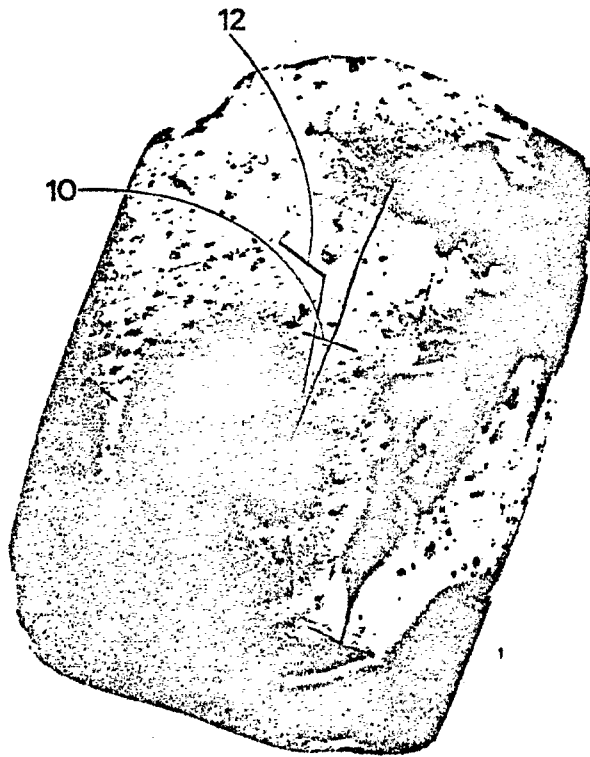


FIG. 3

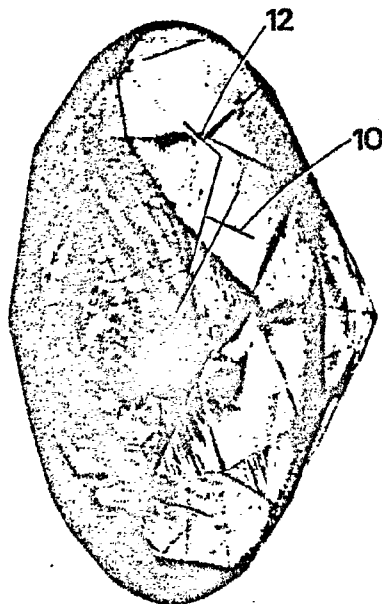


FIG. 4

7600004